



TITLE:

原子炉の高速中性子に関する実験的研究(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

木村, 逸郎

CITATION:

木村, 逸郎. 原子炉の高速中性子に関する実験的研究. 京都大学, 1973, 工学博士

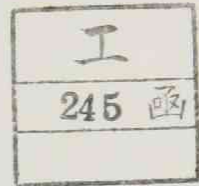
ISSUE DATE:

1973-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.r2252>

RIGHT:



原子炉の高速中性子 に関する実験的研究

木 村 逸 郎

原子炉の高速中性子に関する実験的研究

目 次

第Ⅰ章 緒 論	1
第1節 本論文の目的と意義	1
第2節 本論文の構成	2
(参 考 文 献)	3
第Ⅱ章 しきい検出器を用いた高速中性子スペクトル測定法に関する研究 ...	5
第1節 緒 言	5
第2節 陪ラゲール級数展開法	9
第3節 各種の方法の比較と検討	12
3. 1 比較した方法	12
3. 2 使用したしきい検出器	12
3. 3 入力に用いた高速中性子スペクトル	13
3. 4 計算の方法	15
3. 5 計算結果とその検討	17
第4節 原子炉の高速中性子スペクトル測定への応用	22
第5節 結 言	28
(参 考 文 献)	29
第Ⅲ章 ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタによる高速中性子 スペクトル測定法に関する研究	33
第1節 緒 言	33
第2節 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタ	36
2. 1 カウンタヘッドと測定回路	36

2. 2	検出効率の計算	42
2. 3	分解能の計算	49
2. 4	${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの特性試験	53
第3節	${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタ	58
3. 1	${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの試作	58
3. 2	検出効率と分解能	59
3. 3	${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの特性試験	62
第4節	${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの原子炉の 高速中性子スペクトル測定への応用	67
4. 1	原子炉実験孔の高速中性子スペクトル測定	67
4. 2	黒鉛、鉄などの透過中性子スペクトル測定	69
第5節	結 言	71
	(参 考 文 献)	74
第IV章	${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積の測定および その高速中性子測定への応用に関する研究	78
第1節	緒 言	78
第2節	${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積の測定	81
2. 1	中 性 子 源	81
2. 2	高速中性子束の絶対値の検証	82
2. 3	ロジウム箔の照射と誘導放射能の測定	83
2. 4	${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積の結果と討論	86
第3節	${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応による照射損傷モニタ	89
3. 1	高速中性子による照射損傷と高速中性子照射量の関係	89
3. 2	${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応による照射損傷モニタ	92
第4節	${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の原子炉の 高速中性子束測定への応用	95
第5節	結 言	97

(参 考 文 献)	98
第V章 標準高速中性子スペクトル場を用いた	103
中性子しきい反応平均断面積の測定	
第1節 緒 言	103
第2節 実験の方法と誤差の評価	107
第3節 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ および $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	109
反応断面積の測定	
第4節 $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$, $^{29}\text{Si}(n, p)^{29}\text{Al}$ および	112
$^{30}\text{Si}(n, \alpha)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の測定	
第5節 $^{51}\text{V}(n, \alpha)^{48}\text{Sc}$, $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$, $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$	114
および $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応断面積の測定	
第6節 $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ および $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$	117
反応断面積の測定	
第7節 測定したしきい反応断面積の整理	119
第8節 核分裂中性子スペクトルの検討	121
第9節 結 言	123
(参 考 文 献)	125
第VI章 総括的討論および結論	129
第1節 総 括 的 討 論	129
第2節 結 論	135
(参 考 文 献)	137
謝 辞	139
附表：本論文に関連して発表した論文および学会等講演題目の一覧表	140

第Ⅰ章 緒 論

第1節 本論文の目的と意義

原子炉において中性子束の分布を知ることが原子炉の諸特性を理解する上で極めて重要である。¹⁾ 原子炉における中性子束の分布関数は通常4つの変数、すなわち位置、エネルギー、運動の方向および時間によって表わされる。最近、このうち中性子束のエネルギー分布関数（中性子エネルギースペクトルまたは中性子スペクトルと略称する。以下本論文ではこの略称を用いる）のもつ重要性が以下に述べるような観点から認識されるようになってきた：(1) 高速増殖炉の開発に関連し、従来の原子炉すなわち熱中性子炉では中性子スペクトルが典型的でかつ比較的簡単に表示できたのに対し、高速増殖炉では中性子スペクトルが炉によって相当異なりまた同一の炉でも炉心内の位置および運転経過によって相当変化し、これがその核特性を大きく支配している。(2) 原子炉のしゃへいおよび放射線防護の立場から、しゃへい体中およびその外部における中性子スペクトルを求めることが必要である。(3) 中性子による原子炉材料の照射損傷や放射化量の評価の上でも、中性子スペクトルが必要である。このことは現在研究中の核融合炉においても重視される。(4) 進んだ研究の場合、研究用原子炉の照射条件あるいはビーム実験の条件として、中性子スペクトルを明らかにすることが要請される。

このような要求が多いにもかかわらず、現在のところ原子炉の中性子スペクトルの決定法には、原理的にも実際的にも多くの問題が残っている。

まず、理論計算によって、原子炉の中性子の分布関数を求める場合、これが中性子輸送方程式あるいはその近似形としての減速拡散方程式に従うものとして、各種の解法が提唱され計算コードも整備されてきた。しかしながら、計算では簡単な形状を取扱えるに過ぎず、これと実際の原子炉との対応は一般に相当問題がある。また一方、こうした計算で使用される中性子断面積データが一般に不十分なことが多く、またそれ自身に不確かさがあるため、計算結果の信頼度は十分でない。このこ

とはいわゆる高速中性子エネルギー領域で著しい。

一方、原子炉の中性子スペクトルを実験的に求める方法はいくつか提案されているが、まだどの方法にも問題点が存在し、何れを最良とするかにわかに決めがたい現状である。理論的計算の場合と同様、このこともエネルギーの高い中性子の場合とくに著しい。

このような現状に鑑み、本研究においては、以上の種々の問題点のうち、主として実験上の諸問題を明らかにするとともに、新しい解決法を見出し、これを実際に応用する道をも開こうとするものである。

本研究は全体として、次の3要素から成っている：

- (1) 原子炉の高速中性子スペクトル測定法に関する基礎的研究,
- (2) 標準高速中性子スペクトル場の確立とその応用としてのしきい反応平均断面積の測定,
- (3) 照射損傷量に直接関係する量としての原子炉の高速中性子束の測定法の研究。

本論文において、主として対象とする高速中性子のエネルギー範囲としては、一般的な定義^{2) 3)}にしたがい、数百 keV から 10 MeV までとし、より広い範囲を含む定義⁴⁾にはしたがわない。

第2節 本論文の構成

前節において、本論文の目的と意義について概説したが、以下本論文の構成について述べる。

まず第Ⅱ章においては、原子炉の高速中性子スペクトル測定法に関する基礎的研究およびそれに基ずいた標準高速中性子場の確立の一環として、しきい検出器を用いた高速中性子スペクトル測定法について論ずる。すなわち、しきい検出器による高速中性子束の測定法^{5) 6)}はすでに古くから利用されているが、ここではいくつかのしきい検出器を組み合わせることで未知の高速中性子スペクトルを求める方法を取り扱う。そして、この方法を実際の原子炉における測定に応用し、その結果、京大原子炉、KURの炉心内が核分裂中性子スペクトルに近い標準高速中性子スペクトル場

であることを示す。

第Ⅲ章では、やはり原子炉の高速中性子スペクトル測定法に関する基礎的研究の一環として ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタによる高速中性子スペクトル測定法について論ずる。いわゆる ^6Li サンドイッチカウンタ⁷⁾が提案されてすでに久しく、低出力原子炉や臨界集合体の炉心内の高速中性子スペクトル測定への応用例も2、3報告されているが、ここでは原子炉の実験孔における高速中性子測定を目的とした ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタの基礎的諸特性について述べる。また、この方法を実際の原子炉の実験孔の高速中性子スペクトル測定に応用し、その結果を他の方法による結果と比較する。

次に、第Ⅳ章では高速中性子による照射損傷量に直接関係する量としての原子炉の高速中性子束の測定法について論ずる。まず第一に、中性子しきい反応のうちでも、とくにしきい値が低いものとして注目されている $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103m}\text{Rh}$ 反応⁸⁾のエネルギー依存断面積が実験者によって大きな差異があった点を解明するため、バンデグラフ加速器からの単色中性子を用いた放射化法によって断面積を新たに較正した結果について述べる。さらに、このようにしきい値の低いしきい反応を使用して求めた高速中性子束の値は、高いしきい値のものを使用して得た場合よりも、高速中性子による照射損傷を評価するさいの比例性が良好であることを示す。

第Ⅴ章では、標準高速中性子スペクトル場としてのKUR炉心内と濃縮ウラン核分裂板において、いくつかのしきい反応平均断面積を測定した結果について論ずる。この結果をもとに、従来発表されている多くのしきい反応断面積データと核分裂即発中性子スペクトルの形状に関する検討を行なう。

第Ⅵ章において、まず総括的討論を行ない本論文全体を通じて得られた知見を明らかにするとともに今後解決すべき問題点についても検討する。最後に本論文全体の結論をまとめる。

(参 考 文 献)

- 1) 柴田俊一、木村逸郎：応用物理，39，3（1970）.
- 2) D. J. Hughes： *Neutron Cross Sections*，p.53，Pergamon Press，

Oxford, 1957.

- 3) K. H. Beckurts and K. Wirtz : *Neutron Physics*, p. 5. Springer - Verlag, Berlin, 1964.
- 4) J. B. Marion and J. L. Fowler (ed.) : *Fast Neutron Physics*, Vol. 1, vii (*Preface*), Interscience Publishers, Inc., New York, 1960.
- 5) D. J. Hughes : *Pile Neutron Research*, p. 93, Addison - Wesley Publishing Co., Inc., Cambridge, 1953.
- 6) P. R. Byerly, Jr. : 文献(4), Vol. 1, p. 657.
- 7) T. A. Love and R. B. Murray : IRE Trans., **NS-8**, No. 1, 91 (1961).
- 8) W. L. Zijp : "Review of Activation Methods for the Determination of Fast Neutron Spectra," RCN - 37 (1965).

第Ⅱ章 しきい検出器を用いた高速中性子 スペクトル測定法に関する研究^{1) 2)}

第1節 緒 言

中性子と原子核との相互作用は、中性子のエネルギーや原子核の種類によって大きく相違する。中性子のエネルギーについてみると、いわゆる熱中性子領域から中速中性子領域（数百 keV 以下）においては、弾性散乱と捕獲反応が主である。中性子のエネルギーが増大し、高速中性子領域に入ると非弾性散乱や荷電粒子を放出する反応のチャンネルが開く[※]。また重核では核分裂が可能となるものもある[※]。このように、あるエネルギーより高いエネルギーの中性子によってのみ可能となる反応（すなわち、吸熱反応）を中性子しきい反応または略してしきい反応と呼び、それが可能となるエネルギーをしきい値という。しきい反応をひき起した核は安定な場合と不安定な場合とがあるが、不安定な場合は生成核の放射能を測定することによってその反応数が分る。したがって、反応に寄与した高速中性子の数が求められる。このように、しきい反応を利用して高速中性子を測定するものをしきい検出器という。この言葉は、しきい反応で生成した核を直接検出する場合を含める場合もあるが、本論文では誘導放射能を測定する方法に限定する。さらに、とくに断らない限り、しきい検出器の形状は箔（しきい反応箔ともいわれる）に限る。

しきい検出器は原子炉の高速中性子束を測定するための標準的な方法となっている。これは、しきい検出器が次のような長所を有しているためと考えられる：(1)一部の (n, n') 反応を用いるものを除き、一般には γ 線に感じない、(2)小型であり外部へのケーブルもないためにまわりの中性子場を乱さない、(3)取扱いが簡単で、測定およびデータ整理が容易である、(4)中性子束の絶対値が比較的簡単に求められる、(5)温度等周囲の影響を受けにくい、(6)中性子スペクトルの概形が簡単に求められる、

※ もちろんしきい値以下でも、トンネル効果によってこうした反応が起る確率は0ではないが、ここでは無視できる。

(7)安価なものが多い。

一方、欠点としては：(1)中性子スペクトル測定においてエネルギー分解能が劣る、(2)中性子束の時間変化が測定できない、(3)現状ではしきい反応断面積データの精度が悪いものが多いことなどが挙げられる。

しきい検出器を高速中性子束の測定に使用するためには、次のような条件を満たすことが必要とされる：(1)しきい反応生成核が放射性であり、その崩壊に関するデータが既知であること、しかもその放射能が測定しやすいこと、(2)しきい反応生成核の中性子吸収などによる燃焼が無視できること、(3)断面積データの精度がかなり良いこと、(4)検出器が箔や線の形で容易に入手でき安価であること。このような条件をほぼ備えたしきい検出器の種類は多いが、(2)に挙げた断面積データの精度の良否によって有用性が支配される。したがって、現実的には精度が比較的高くて信頼できると見なせるいくつかのしきい反応をとくに標準的なものと見なすことがある(3) 4)。

何種類かのしきい検出器を組み合わせて、高速中性子スペクトルを求める方法がいろいろと試みられている。

いま、高速中性子スペクトル $\phi(E)$ の場所で照射されたしきい検出器の誘導放射能の計数値を C_i とすると、

$$C_i = \frac{\eta_i \xi_i N_{oi}}{\lambda_i T_{ci}} (1 - e^{-\lambda_i T_{ii}}) e^{-\lambda_i T_{wi}} (1 - e^{-\lambda_i T_{ci}}) \cdot \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \phi(E) dE, \quad (2.1)$$

$$i = 1, 2, 3, \dots, N.$$

ただし、ここで、

E : 中性子エネルギー、

N : 使用するしきい検出器の数、

i : 注目するしきい検出器の番号、

T_{ii} : 第 i 番目のしきい検出器の照射時間、

T_{wi} : 第 i 番目のしきい検出器の照射後計数開始までの時間、

T_{ci} : 第 i 番目のしきい検出器の計数時間、

η_i : 第 i 番目のしきい検出器の誘導放射能の検出効率、
 ξ_i : 第 i 番目のしきい検出器で、しきい反応生成核が 1 個崩壊したさいに、
いま測定している放射線の出る割合、
 λ_i : 第 i 番目のしきい検出器のしきい反応生成核の崩壊定数、
 N_{oi} : 第 i 番目のしきい検出器中の被反応核数、
 $\sigma_i(E)$: エネルギー依存のしきい反応断面積。

これをまとめて、

$$C_i = F_i R_i, \quad i = 1, 2, 3, \dots, N, \quad (2.2)$$

とも書く。ここで

$$F_i = \frac{\eta_i \xi_i N_{oi}}{\lambda_i T_{ci}} (1 - e^{-\lambda_i T_{ii}}) e^{-\lambda_i T_{wi}} (1 - e^{-\lambda_i T_{ci}}), \quad (2.3)$$

$$R_i = \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \phi(E) dE. \quad (2.4)$$

R_i はしばしば反応率とよばれる。ここで問題は、 $\sigma_i(E)$ および C_i ($i=1, 2, 3, \dots, N$) を用いて いかに正確に $\phi(E)$ を求めるかということである。

このために、すでにいくつかの方法が提案されている。これらの方法を大別すると次の 3 種類に分類できる²⁾⁵⁾：(1)中性子スペクトル合成法、(2)摂動法、(3)半実験法。まず第 1 の中性子スペクトル合成法は未知の高速中性子スペクトル $\phi(E)$ を階段関数、多角形関数、指数関数などの組み合わせ、各種の級数などで近似する方法で、一般性がある。とくに最近では、得られた結果の誤差をいかに小さくするかが工夫されている^{6)~9)}。次に摂動法は 高速中性子スペクトルが核分裂中性子スペクトルに近い場合にその偏差を計算する方法である¹⁰⁾。この方法では高速中性子スペクトルが振動したり負の値になることがないのが長所であるが、核分裂中性子スペクトルから大きくずれると使用できないため一般性に欠ける。最後に、半実験法は原子炉物理的計算によって、高速中性子スペクトル $\phi(E)$ を、2, 3 のインデックスで表示しておき、実験結果からこれらのインデックスを決定する方法である¹¹⁾。この方法によって、原子炉の炉心の核的性質を端的に判定することが容易である。しかしながら、この方法も一般性に欠けるためすべての場合に適用できない。表 2-1 は現在までに提案された主な方法を取りまとめたものである。

表 2-1 しきい反応断を用いた高速中性子スペクトル解析の方法

方 法	発 表 者 (年)(文献 番号)	概 要 お よ び 特 徴	応 用 例
積分中性子束法	Hughes (1953) (12) Hurst (1956) (13)	しきい反応の有効しきい値を求め、これ以上の中性子束を 求める方法であり、複数のしきい検出器を用いればスペク トルも出せる	核分裂スペクトルに近いときよく使わ れる McElroy (1967) (8), (1969) (14) が改 良し、くり返し法として使っている
階段スペクトル 近 似	Trice (1957) (15) Fisher (1960) (16) Delattre (1961) (17)	スペクトル測定域をいくつかのエネルギー群に分割し、この 間では中性子束は一定と見なすものである。分割点をしき い値に合わせるが多い。	今日でも時々使用されている。 例えば Köhler (1970) (18) など。
多 角 形 近 似	Uthe (1957) (19) Delattre (1961) (17)	スペクトルを多角形で近似する方法である	最近くり返し法により誤差を最小にす る方法がとられている。Greer and Walker (1966) (7)
単 純 級 数 展 開	Uthe (1957) (19) Brownell (1963) (20)	$\phi(E) = \sum_{n=0}^{N-1} B_n E^n$ または $\phi(E) = W(E) \sum_{n=0}^{N-1} B_n E^n$ として、 B_n を求める方法である。 $W(E)$ は重率関数であ る	重率関数の選び方が重要であるが一般 にあまり近似はよくない
直 交 級 数 展 開 (その1)	Ringle (1963) (21) Kimura (本論文)	$\phi(E) = \sum_{n=0}^{N-1} B_n \varphi_n(E)$ と展開する。 $\varphi_n(E)$ として Legendre, Fourier, Tchebysheff, Laguerre 級数など がある。重率関数をつけることが多い	本論文では核分裂中性子スペクトルが 第1項となる Laguerre 級数とすること により、よい近似をえた。
直 交 級 数 展 開 (その2)	Hartmann (1957) (22) Trice (1957) (15)	上と同じ展開であるが、 $\varphi_n(E)$ をしきい反応断面積 $\sigma_i(E)$ から Schmidt の方法より求めるものである。重率 関数をつけることが多い	中性子スペクトルを級数展開する方 法は、その後、熱中性子スペクトルの積 分測定法へと応用され、多くの成果を 生んでいる。例えば、
直 交 級 数 展 開 (その3)	Lanning and Brown (1961) (23)	$\varphi_n(E)$ を単純なべき級数から Schmidt の方法で求める。 この場合も重率 $W(E)$ をつけることが多い。断面積展開よ り振動が少いという	Lanning (1963) (24) Kanda and Furuhashi (1964) (25) Ibarra and Sher (1965) (26)
直 交 級 数 展 開 (その4)	DiCola and Rota (1964) (6)	$\phi(E)$ の級数展開において、 $\varphi_n(E)$ の形や展開項数の影 響を検討し、相対誤差を最小にするような近似を選ぶもの である。RDMM と呼ぶ	
指 数 関 数 近 似 (くり返し法)	Dierckx (1962) (27) Bresesti (1963) (28)	スペクトル測定域をいくつかのエネルギー群に分割し、この 間では中性子束は指数関数をしていると見なすものである。 分割点を実効しきい値とするが、その値はくり返し法で求 める	350 keV 以上は 指数関数のつなぎ合 わせとし、これ以下は $\frac{1}{E}$ とつながると した例がある。Chiocchio (1971) (29)
デルタ関数を 使う方法	Ben-David (1964) (30)	しきい反応の応答関数をデルタ関数と見なし、 $\phi(E)$ を 求める方法である。くり返し法を使うのがよい	
指 数 級 数 展 開	Fährmann (1964) (31)	$\phi(E) = \phi_f(E) \left(1 + \sum_{n=1}^{N-1} B_n e^{-\beta_n E} \right)$ とする方法、 B_n, β_n を決めるのが問題である	
摂 動 法 (インデックス 法)	Grundl and Usner (1960) (10)	$\phi(E) = C E^{1/2} e^{-\beta E}$ とする方法、 β はいろいろの しき い反応の比から求める	核分裂スペクトルに近いときのみ有効 である
半 実 験 式 法 (その1)	Dietrich and Thomas (1961) (11)	$\phi(E) = \phi_f(E) \cdot f(\alpha, E) = \frac{\phi_f(E)}{\sum_c \frac{1}{1 + \alpha E^{-0.725}}}$ とする。スミシングプール法で、 $\alpha=11$ がよいという	均質系でのみ意味がある
半 実 験 式 法 (その2)	Genthon (1964) (32)	$\phi(E) = \theta [\phi_o(E) + h \phi_c(E)]$ とするもの、中速領域 から高速領域にわたりスペクトルをインデックス化してい る。	
半 実 験 式 法 (その3)	Ebersoldt (1967) (33)	$\phi(E) = \pi \phi_o(E) + \phi_f(E)$ 、 $\phi_o(E)$ は一次近似関数 である。 π は $\int_0^\infty [\phi_f(E)]^2 dE$ が最小になるようにえらぶ	MESCO コードとして使われている
Greer and Walker の方法	Greer and Walker (1966) (7)	$\phi(E)$ としては多角形を考え、誤差最小の条件でくり返し を行う。熱中性子域から高速中性子域に至る広範な スペクトルを求める	SPECTRA コードとして使われて いる
McElroy の 方 法	McElroy (1967) (8) McElroy (1969) (14)	積分中性子束法の改良であり、くり返し法によって放射射 能の計算値と実験値の比を1に近づけてゆく。やはり広い エネルギー領域で使える	SAND-I, SAND-II コードとし て使われている

このような数多くの提案があるにもかかわらずいずれの方法にもいろいろ問題が存在し、未だ標準的な方法として一般に認められているものはないのが現状である。[※]

本論文では、原子炉の高速中性子スペクトル測定という実際的な目標の上に立って、次に述べるような陪ラゲール級数展開法を提案する。次に、その実用性に関し、いくつかの高速中性子スペクトルを入力として計算機実験を行ない、これらのスペクトルの再生について検討する。この場合、現在までに提唱されている他の主な方法による結果と比較し、陪ラゲール級数展開法が優れていることを明らかにする。こうした検討に使用するしきい検出器とそのしきい反応としては、あくまでも実用性を重んじた選定を行ない、のちに実際の原子炉における高速中性子スペクトル測定にさいして、すぐに使用できるようにしている。さらに、この計算機実験において、どれか1つのしきい検出器の誘導放射能測定に誤差がある場合（しきい反応断面積、 $\sigma_i(E)$ に誤差がある場合と等価）における高速中性子スペクトルの再生についても検討する。この場合、DiCola and Rota の相対誤差最小化法(RDMM)⁶⁾を参考にして、陪ラゲール級数で展開したRDMMに関し、若干の検討を加える。

原子炉の炉心内、実験孔あるいはしゃへい体中における高速中性子スペクトルを正確に求めることは、原子炉の特性を知る上で極めて重要である。そこで、上述の計算機実験において使用したものと同じしきい検出器を用いて、実際の原子炉の炉心内や実験孔の高速中性子スペクトルを測定し、その結果を他の方法によって測定された結果や理論計算によって得られた結果と比較検討する。

第2節 陪ラゲール級数展開法

高速中性子スペクトル $\phi(E)$ を直交級数で展開する方法として、いくつかの方法が提案されているが、ここでは陪ラゲール級数による展開法を提案する。とくに、この展開を行なうに際し、核分裂中性子スペクトルの実験式が陪ラゲール級数の第1項に一致することに注目し、これを展開の中に組みこんだ。最近、核分裂中性子スペクトルの形状そのものに対し、平均エネルギーが従来の値より相当高いのではな

※ 1972年2月、I A E Aは原子炉放射線測定ワーキンググループの要請にもとづき、しきい検出器による中性子スペクトル評価法に関する国際比較を行なうことになり現在調査中である。

いかという問題が提起されているが^{34)~37)}、こうした点に関しては 第V章で論ずることとし、ここではCranberg らが飛行時間分析法と原子核乾板によって測定した結果から出した2つの実験式³⁸⁾のうち簡単な形のものを使用する。これを式で書くと次のようになる：

$$\phi_f(E) = 0.770 E^{1/2} e^{-0.776 E} \quad (2.6)$$

いま、次のような陪ラゲール級数の関数系を考える：

$$\left\{ \frac{L_n^{(1)}(x) x^{1/2} e^{-x/2}}{\sqrt{n+1}} \right\} \in \text{ON}(0, \infty), \quad (2.7)$$

ただし、ここで、 $x = 1.552 E$ 。

この場合、上記の核分裂スペクトルの実験式 $\phi_f(E)$ は、定数 C_0 を用いると、この関数系の第1項、すなわち、 $n=0$ のときに等しく、

$$\phi_f(E) = C_0 \frac{L_0^{(1)}(x) x^{1/2} e^{-x/2}}{\sqrt{0+1}} = C_0 x^{1/2} e^{-x/2}, \quad (2.8)$$

とかける。ただし、

$$C_0 = 0.770 / \sqrt{1.552} \quad (2.9)$$

したがって、もし未知の中性子スペクトル $\phi(E)$ を

$$\phi(E) \simeq C_0 \sum_{n=0}^{N-1} B_n \left\{ \frac{L_n^{(1)}(x) x^{1/2} e^{-x/2}}{\sqrt{n+1}} \right\} \quad (2.10)$$

のように展開した場合、 $\phi(E)$ が核分裂スペクトルに近ければ、展開係数 B_n のうち、 B_0 以外は0に近づく。言葉を換えていえば、この展開は核分裂スペクトルを第1項にした陪ラゲール級数展開といえる。さらに別の見方をすれば、核分裂スペクトルを重率関数とした陪ラゲール級数展開ともいえる。しかも、この関数系は正規直交しているのが特徴である。図2-1はこの関数系を図示したものである。

なお、比較のために、同じく陪ラゲール級数で、 $\alpha=1/2$ の場合についても検討した。このときの $\phi(E)$ は、

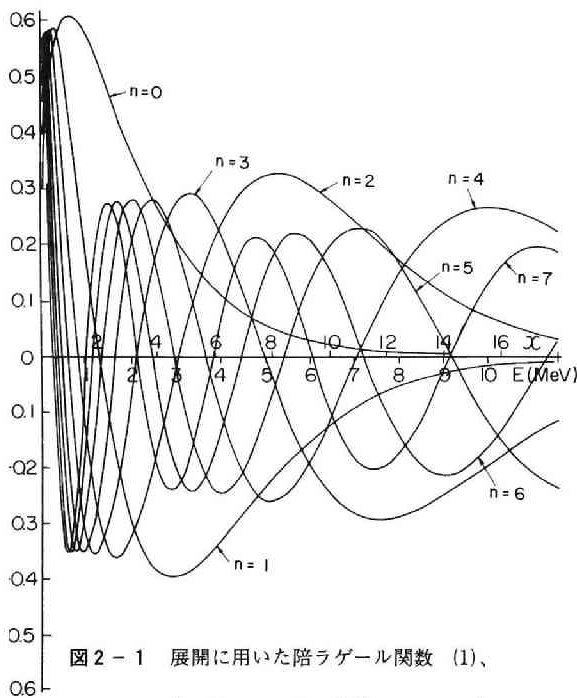


図 2-1 展開に用いた陪ラゲール関数 (1)、

$$\left\{ L_n^{(1)}(x) x^{1/2} e^{-x/2} / \sqrt{n+1} \right\}$$

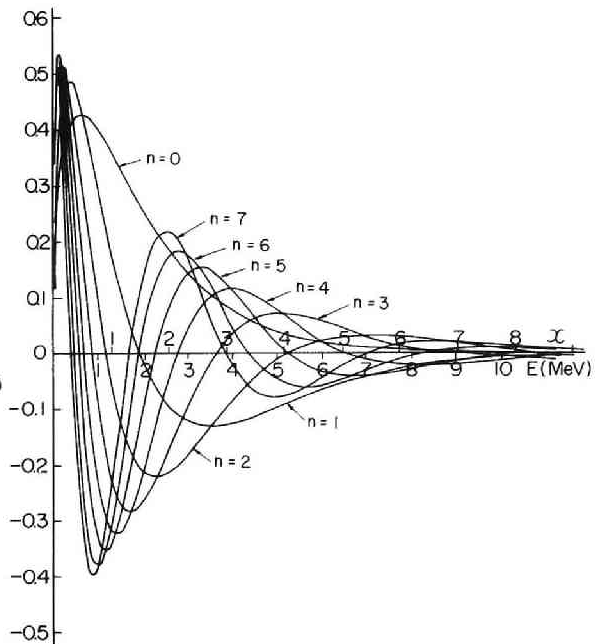


図 2-2 展開に用いた陪ラゲール関数 (2)、

$$\left\{ L_n^{(1/2)}(x) x^{1/2} e^{-x} \right\}$$

$$\phi(E) \simeq \frac{0.770}{\sqrt{0.776}} \sum_{n=0}^{N-1} B_n L_n^{(1/2)}(x) x^{1/2} e^{-x}, \quad (2.11)$$

ただし、ここで、 $x = 0.776 E$ 。この場合は 展開に用いている関数系

$\left\{ L_n^{(1/2)}(x) x^{1/2} e^{-x} \right\}$ は正規直交されていないが、あとに示すように、この級

数展開により高速中性子スペクトルを近似すると非常に良いことが分る。この関数系を計算したものを図 2-2 に示す。この関数系の方が図 2-1 に示したものより、振動の減衰が早いことが分る。

上述の 2 つの陪ラゲール級数展開法では、展開項数をしきい検出器の数 N と等しくとった。しかしながら、高速中性子スペクトルを近似する上で 展開項数を N に等しくすることは必ずしも必要でなく、むしろ、展開項数が N より小さい値で、次に定義する相対誤差 Q が最小になる場合の方が多いいわれている⁶⁾：

$$Q = \sum_{i=1}^N \left\{ \frac{A_i - \int \sigma_i(E) \phi^t(E) dE}{A_i} \right\}^2, \quad (2.12)$$

ただし、ここで、

t : 展開項数、 $1 \leq t \leq N$ 、

$\phi^t(E)$: t 個の項で級数展開近似した高速中性子スペクトル、

A_i : 第 i 番目のしきい検出器の放射能 (反応率に換算)。

そこで、展開係数 B_j は次式を解いて計算できる：

$$\frac{\partial Q}{\partial B_j} = 0, \quad j = 1, 2, 3, \dots, t, \quad (2.13)$$

この方法は R DMM と呼ばれる⁶⁾。ここでは陪ラゲール級数 ($\alpha = \frac{1}{2}$) で展開した R DMM に関し、若干の検討を加える。とくに、しきい検出器の誘導放射能測定に誤差がある場合について吟味する。

第 3 節 各種の方法の比較と検討

3.1 比較した方法

表 2-1 に示したように、複数のしきい検出器を使用して、原子炉の高速中性子スペクトルを求める方法として、数多くの提案がなされている。しかも、単に直交関数近似といっても使用する関数系としていろいろなものが考えられる。ここでは前述の 2 種類の陪ラゲール級数展開法および以下に述べる 6 種類の方法について検討した：(1) ルジャンドル級数展開²¹⁾、(2) 断面積直交関数展開¹⁵⁾²²⁾、(3) 単純級数直交関数展開²³⁾、(4) 多角形近似¹⁹⁾、(5) 指数関数近似²⁷⁾、(6) デルタ関数近似³⁰⁾。それぞれの概要を表 2-2 にまとめる。

3.2 使用したしきい検出器

第 2 節において提案した陪ラゲール級数展開法および上述の各種の方法を計算機実験によって比較検討した。この際使用するしきい検出器とそのしきい反応としては、あくまでも実用性を重んじた選定を行ない、のちに実際の原子炉における高速中性子スペクトル測定にすぐに使用できるようにした。具体的には表 2-3 に示す

表2-2 比較検討したスペクトル解析法
(未知のスペクトルを $\phi(E)$ とする)

番号	解析法	概 要	参考文献
1	陪ラゲール級数展開 (正規化)	$\phi(E) = \frac{0.770}{\sqrt{1.552}} \sum_{n=0}^{N-1} B_n \left\{ \frac{L_n^{(1)}(x) x^{1/2} e^{-x/2}}{\sqrt{n+1}} \right\}$ として、 B_n を求める (但し $x = 1.552 E$)	本論文
2	陪ラゲール級数展開 (非正規化)	$\phi(E) = \frac{0.770}{\sqrt{0.776}} \sum_{n=0}^{N-1} B_n L_n^{1/2}(x) x^{1/2} e^{-x}$ として、 B_n を求める (但し $x = 0.776 E$)	本論文
3	ルジャンドル級数展開	$\phi(E) = \sum_{n=0}^{N-1} B_n P_n(E)$ として、 B_n を求める	Ringle (21) など
4	断面積直交関数展開	$\phi(E) = W(E) \sum_{n=1}^N B_n \psi_n(E)$ 、 $\psi_n(E)$ は $\sigma_i(E)$ から直交条件を用いて求める。そして上と同様に B_n を求める。 $W(E) = e^{-E}$ 使用	Hartmann (22) Trice (15)
5	単純級数直交関数展開	$\phi(E) = W(E) \sum_{n=1}^N B_n \psi_n(E)$ 、 $\psi_n(E)$ は単純級数から直交条件を用いて求める。そして上と同様に B_n を求める。 $W(E) = e^{-E}$ 使用	Lanning and Brown (23)
6	多角形近似	$\phi(E) \sim \phi_k \cdot \left(\frac{E - E_{k-1}}{E_k - E_{k-1}} \right) + \phi_{k-1} \cdot \left(\frac{E_k - E}{E_k - E_{k-1}} \right),$ $1 \leq k \leq N$ 、但し、 E が最小のとき $\phi(E) \sim E_1 \phi_1 / E$ 、最大のとき $\phi(E) \sim \phi_N e^{-(E - E_N)}$ とした	Uthe (19)
7	指数関数近似	$\phi(E) \sim \phi_k e^{-h_k \cdot (E - E_{\text{eff}k}^*)}, \quad k = 2, 3, \dots, N-2$ $\phi(E) \sim k e^{-h_{N-1} E}, \quad k = N-1, N$ として、 k と ϕ_k を求める。くり返し法により $E_{\text{eff}k}^*$ を順次修正した	Dierckx (27)
8	デルタ関数近似	$\sigma_k(E) = \sigma_{\text{eff}k} \delta(E - \bar{E}_k^{(n)})$ として、 $E = \bar{E}_k^{(n)}$ のみ応答(断面積)があるとする。この $\bar{E}_k^{(n)}$ は \bar{E}_k^0 から順次くり返しによって修正して求めた。そして $\bar{E}_k^{(n)}$ のところで $\phi(E)$ を決めてつなぐ。	Ben David (30)

ようなしきい検出器を使用した。これらのしきい検出器に関するしきい反応断面積としては主として、Liskien and Paulsenの図表³⁹⁾ および Martinらの値⁴⁰⁾を採用した。それらの値を図2-3に示す。

3.3 入力に用いた高速中性子スペクトル

計算機実験の入力とする高速中性子スペクトルとしては、次の5種類のものを使用した：(1)核分裂中性子スペクトル、 $\phi_f(E)$ 、(2) $\phi_f(E)e^{-0.5E}$ 、(3) $\phi_f(E)e^{+0.5E}$

表2-3 使用したしきい反応一覧表

反 応	半減期	E _{eff} (MeV)	σ_o (mb)	$\bar{\sigma}$ (mb)	測定放射能と測定器	使用した検出器
$^{103}\text{Rh}(n, n')^{103m}\text{Rh}$	57m	1.28*	$960 \pm 55^*$	$558 \pm 32^*$	20keV X, thin NaI(Tl)	R/EX社 ⁺ 製 純度 99.9%
$^{116}\text{In}(n, n')^{116m}\text{In}$	4.5h	1.65*	$368 \pm 22^*$	$177 \pm 10^*$	335keV γ , Ge(Li) NaI(Tl)	アサヒメタル社製ゾーン メルトしたものを圧延 純度 99.999%
$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$	14.3d	3.2**	350**	66**	β , GM	純度 99.999%のイオウ 粉をプレス成型
$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	71.3d	3.3***	633***	104***	810keV γ , Ge(Li) NaI(Tl)	R/EX社 ⁺ 製 純度 99.97%
$^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$	9.5m	5.6***	98.4***	3.3***	840keV γ , Ge(Li) NaI(Tl)	アサヒメタル社製ゾーン メルトしたものを圧延 純度 99.999%
$^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$	15 h	7.6***	172***	1.4***	1.37 MeV γ , Ge(Li) NaI(Tl)	R/EX社 ⁺ 製 純度 99.8%
$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	2.58h	7.6***	101***	0.82***	840keV γ , Ge(Li) NaI(Tl)	電子ビーム融解, ゾーン メルト20回ものを使用 九州大学北島一徳教授による
$^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$	15 h	8.0***	97.3***	0.63***	1.37MeV γ , Ge(Li) NaI(Tl)	アサヒメタル社製ゾーン メルトしたものを圧延 純度 99.999%

* 本論文 第IV章参照

** Beckurts and Wirtz (41)

*** 今回計算して求めた値, 但し, エネルギー依存断面積は Liskien and Paulsen (39) よりとった

+ R/EX社: Reactor Experiments, Inc. (USA)

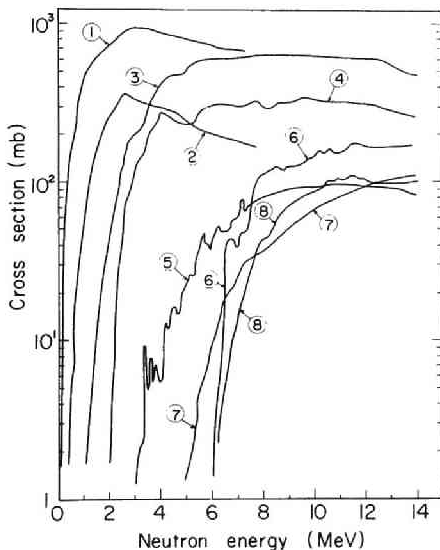


図2-3 試算および実験に用いたしきい反応断面積(39) 40)

- ① $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103m}\text{Rh}$, ② $^{116}\text{In}(n, n')^{116m}\text{In}$
 ③ $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, ④ $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$
 ⑤ $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$, ⑥ $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$
 ⑦ $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$, ⑧ $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$

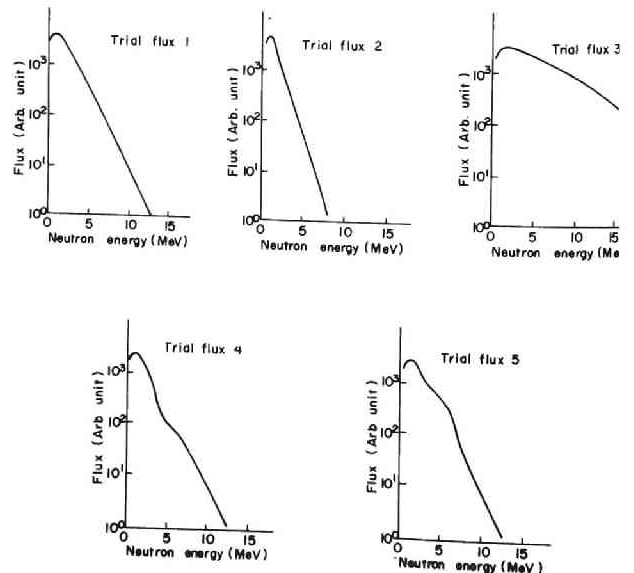


図2-4 試算に用いた5種類の高速中性子スペクトル

(4)核分裂中性子スペクトルにくぼみのある形状、(5)核分裂中性子スペクトルにこぶのある形状。実際の値および形状を表 2 - 4 および図 2 - 3 に示す。

表 2 - 4 試算に用いた 5 種類の高速中性子スペクトルの形状 (図 2 - 4 参照)

1. 核分裂スペクトル³⁸⁾ : $\phi(E) = \phi_f(E) = 0.770 E^{1/2} e^{-0.776 E}$ 下表参照
2. 核分裂スペクトルを軟化 $\phi(E) = \phi_f(E) e^{-0.5 E}$
3. 核分裂スペクトルを硬化 $\phi(E) = \phi_f(E) e^{+0.5 E}$
4. 核分裂スペクトルにくぼみのある形状 下表参照
5. 核分裂スペクトルにこぶのある形状 : 下表参照

E	$\phi_f(E)$	スペクトル (4)	スペクトル (5)	E	$\phi_f(E)$	スペクトル (4)	スペクトル (5)	E	$\phi_f(E)$	スペクトル (4)	スペクトル (5)	E	$\phi_f(E)$	E	$\phi_f(E)$
0.1	0.225			2.9	0.138	0.128	0.147	5.7	0.0221	0.0131	0.0370	8.5	0.00307	11.3	0.000403
0.2	0.295			3.0	0.130	0.113	0.142	5.8	0.0206	0.0125	0.0340	8.6	0.00285	11.4	0.000374
0.3	0.334			3.1	0.122	0.0960	0.135	5.9	0.0192	0.0120	0.0310	8.7	0.00266	11.5	0.000348
0.4	0.357			3.2	0.115	0.0700	0.130	6.0	0.0179	0.0114	0.0280	8.8	0.00247	11.6	0.000323
0.5	0.369			3.3	0.108	0.0650	0.125	6.1	0.0167	0.0111	0.0258	8.9	0.00230	11.7	0.000300
0.6	0.374			3.4	0.101	0.0570	0.120	6.2	0.0156	0.0105	0.0230	9.0	0.00214	11.8	0.000279
0.7	0.374			3.5	0.0953	0.0505	0.115	6.3	0.0146	0.0102	0.0205	9.1	0.00197	11.9	0.000259
0.8	0.370			3.6	0.0894	0.0453	0.111	6.4	0.0136	0.00985	0.0184	9.2	0.00185	12.0	0.000241
0.9	0.363			3.7	0.0839	0.0413	0.108	6.5	0.0127	0.00950	0.0165	9.3	0.00172	12.1	0.000224
1.0	0.354	$\phi_f(E)$	$\phi_f(E)$	3.8	0.0787	0.0377	0.104	6.6	0.0118	0.00915	0.0150	9.4	0.00160	12.2	0.000208
1.1	0.344			3.9	0.0737	0.0345	0.101	6.7	0.0110	0.00885	0.0135	9.5	0.00149	12.3	0.000193
1.2	0.332			4.0	0.0691	0.0322	0.0970	6.8	0.0103	0.00850	0.0122	9.6	0.00139	12.4	0.000180
1.3	0.320	同	同	4.1	0.0647	0.0300	0.0935	6.9	0.00956	0.00820	0.0110	9.7	0.00129	12.5	0.000167
1.4	0.307			4.2	0.0606	0.0280	0.0900	7.0	0.00891	0.00790	0.0100	9.8	0.00120	12.6	0.000155
1.5	0.295			4.3	0.0568	0.0262	0.0860	7.1	0.00830	0.00750	0.00900	9.9	0.00112	12.7	0.000144
1.6	0.281	じ	じ	4.4	0.0531	0.0247	0.0825	7.2	0.00774	0.00720	0.00820	10.0	0.00104	12.8	0.000134
1.7	0.268			4.5	0.0497	0.0233	0.0785	7.3	0.00721	0.00685	0.00740	10.1	0.000966	12.9	0.000124
1.8	0.256			4.6	0.0465	0.0220	0.0755	7.4	0.00672	0.00655	0.00672	10.2	0.000898	13.0	0.000115
1.9	0.243			4.7	0.0435	0.0208	0.0710	7.5	0.00626			10.3	0.000835	13.1	0.000107
2.0	0.231			4.8	0.0407	0.0198	0.0670	7.6	0.00583			10.4	0.000776	13.2	0.0000996
2.1	0.219			4.9	0.0380	0.0188	0.0640	7.7	0.00543			10.5	0.000722	13.3	0.0000925
2.2	0.207			5.0	0.0356	0.0180	0.0605	7.8	0.00506	$\phi_f(E)$	$\phi_f(E)$	10.6	0.000671	13.4	0.0000859
2.3	0.196			5.1	0.0332	0.0171	0.0570	7.9	0.00471			10.7	0.000624	13.5	0.0000798
2.4	0.185			5.2	0.0310	0.0162	0.0530	8.0	0.00438			10.8	0.000580	13.6	0.0000741
2.5	0.175			5.3	0.0290	0.0155	0.0500	8.1	0.00408	同	同	10.9	0.000539	13.7	0.0000688
2.6	0.165	0.164	0.166	5.4	0.0271	0.0149	0.0470	8.2	0.00380	じ	じ	11.0	0.000501	13.8	0.0000639
2.7	0.156	0.153	0.160	5.5	0.0253	0.0143	0.0435	8.3	0.00354			11.1	0.000466	13.9	0.0000594
2.8	0.147	0.142	0.153	5.6	0.0236	0.0136	0.0403	8.4	0.00329			11.2	0.000433	14.0	0.0000551

この 5 種類のスペクトルによって、原子炉の高速中性子スペクトルをすべて代表しつくせるものではないが、いずれも原子炉において実際に存在すると考えられる形状であるため計算機実験による比較の上でそれぞれ意義あるものと考えた。

3.4 計算の方法

上記の入力中性子スペクトルとおのののしきい検出器のしきい反応断面積から、各しきい検出器の反応率 R_i を計算しこれを以下の計算の入力とした。

第 2 節において提案した陪ラゲール級数展開法およびその他の方法をいずれも ALGOL によって計算コードに書き、電子計算機 OKITAC-5090H を用いて計算

した。ここで中性子エネルギーは、0.1MeV から 0.1MeV間隔でとり、通常 14MeV までとした。

各方法による計算結果と入力に用いた高速中性子スペクトルは同じ図にプロットして比較したほか、次に定義する偏差および積分的誤差を算出して比較した。まず、偏差 $D(E)$ は、

$$D(E) = \frac{\phi_{\text{out}}(E) - \phi_{\text{in}}(E)}{\phi_{\text{in}}(E)} \times 100 (\%) \quad (2.13)$$

次に積分的誤差としては、

$$E_1 = \frac{\int_{E_l}^{E_u} |\phi_{\text{out}}(E) - \phi_{\text{in}}(E)| dE}{\int_{E_l}^{E_u} \phi_{\text{in}}(E) dE} \times 100 (\%), \quad (2.14)$$

$$E_2 = \frac{\sqrt{\int_{E_l}^{E_u} \{ \phi_{\text{out}}(E) - \phi_{\text{in}}(E) \}^2 dE}}{\int_{E_l}^{E_u} \phi_{\text{in}}(E) dE} \times 100 (\%), \quad (2.15)$$

$$E_3 = \frac{\sqrt{\int_{E_l}^{E_u} \{ D(E) \}^2 dE}}{\int_{E_l}^{E_u} dE} (\%), \quad (2.16)$$

ただし、 E_l 、 E_u は積分的誤差計算の下限および上限のエネルギーである。なお、必要によって、前に定義した相対誤差 Q も計算した。

次に、ある 1つのしきい検出器の誘導放射能測定に系統的誤差がある場合について検討した。これは、この反応のしきい反応断面積 $\sigma_i(E)$ に系統的誤差がある場合と等価である。ここに挙げた 7種類のしきい反応はいずれもよく用いられるものであり、そう大きな断面積の誤差や誘導放射能測定の誤差はないと思われる。ここでは、計算の入力に用いた反応率の値を 1つずつ 5%大きく見積ると陪ラゲール級数で展開した RDMM による高速中性子スペクトルの再生がいかに変化するかについて

しらべた。

3. 5 計算結果とその検討

5種類の入力中性子スペクトルに対する8種類の方法の結果を図2-5～2-14および表2-5に示す。

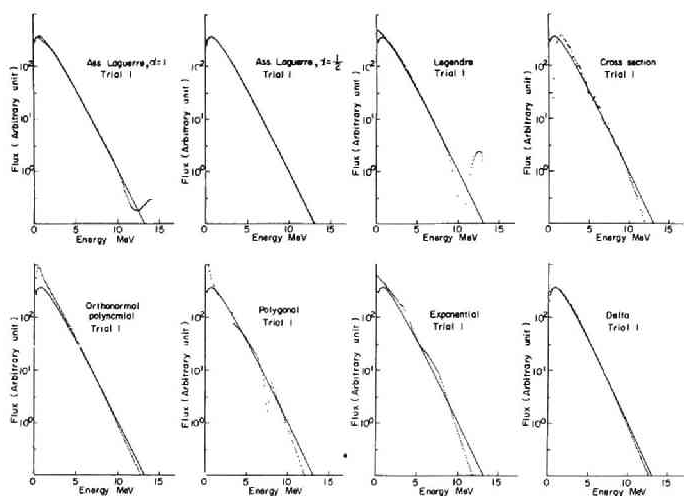


図2-5 8種類の解析法により高速中性子スペクトル（核分裂スペクトル）を求めたさいの再生

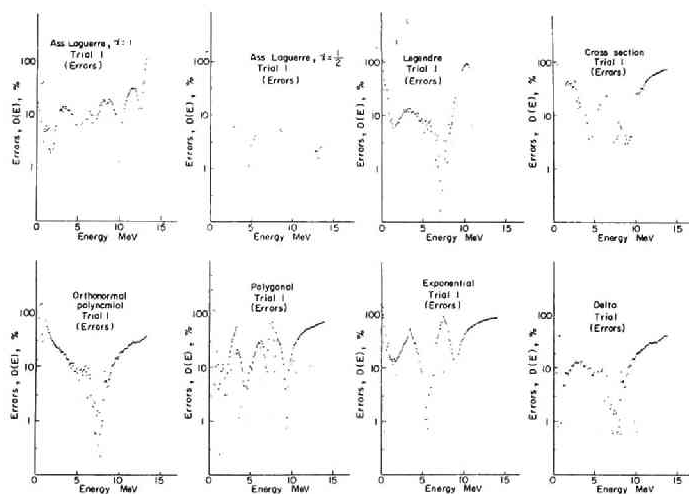


図2-6 8種類の解析法により高速中性子スペクトル（核分裂スペクトル）を求めたさいの誤差

この結果からみて、本論文で提案した2種類の陪ラゲール級数展開法がすべての場合について、もっとも優秀であり、中性子スペクトルの再生が良いことが分る。なお、2種類の陪ラゲール級数展開法を比較すると、どちらかといえば、 $\alpha = \frac{1}{2}$ の場合（（2. 11）式参照）の方が、 $\alpha = 1$ なる正規直交系の場合（（2. 10）式参照）より再生が良い。

核分裂中性子スペクトルに対する結果はいずれの方法ともほぼ満足する再生を有しているのに対し、これ以外の場合の再生にはかなり優劣の差が生じる。

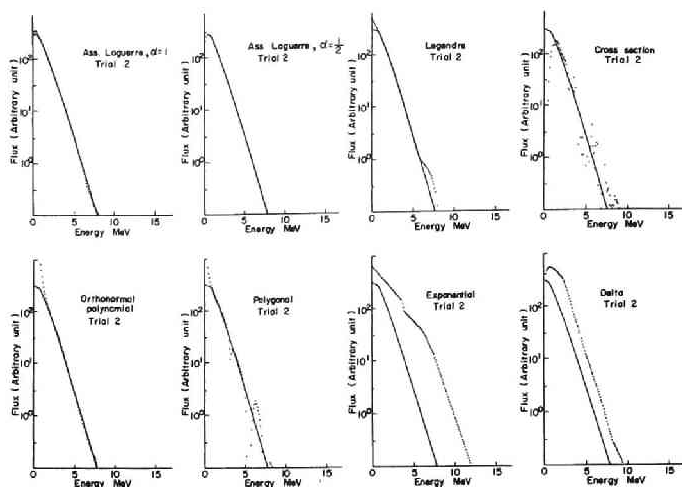


図 2-7 8種類の解析法により軟化スペクトルを求めたさいの再生

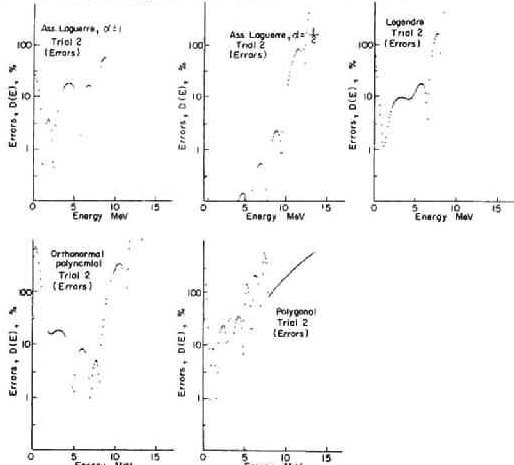


図 2-8 5種類の解析法により軟化スペクトルを求めたさいの誤差

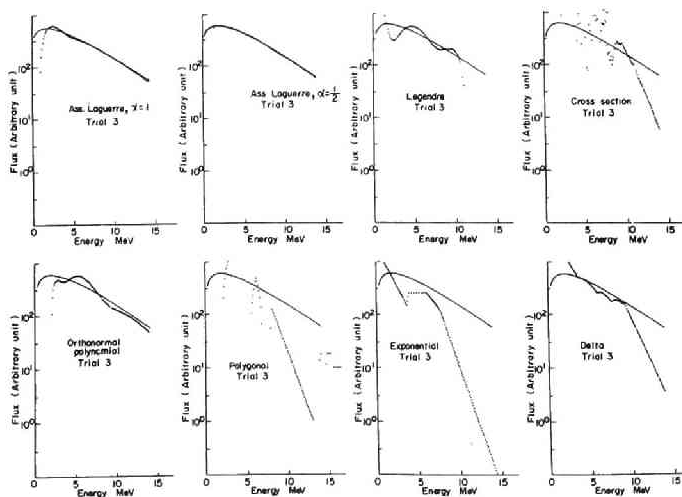


図 2-9 8種類の解析法により硬化スペクトルを求めたさいの再生

とくに、硬いスペクトル($\phi_f(E) \cdot e^{+0.5E}$)の場合には 陪ラゲール級数展開法以外の結果はすべてあまり良くない。

多角形近似法は核分裂中性子スペクトル以外すべて不良であり、殆んど実用性はない。指数関数近似も核分裂中性子スペクトル以外あまり良くない。次に、デルタ関数近似は 上述の硬いスペクトルに対する結果は悪いが、核分裂中性子スペクトルにくぼみのある場合およびこぶのある場合の結果は比較的良好的な再生を示していることが注目される。

Ringle の論文²¹⁾ では断面積直交関数展開法が最良で、これに次いでルジャンドル級数展開法が良いといっているが、本論文では

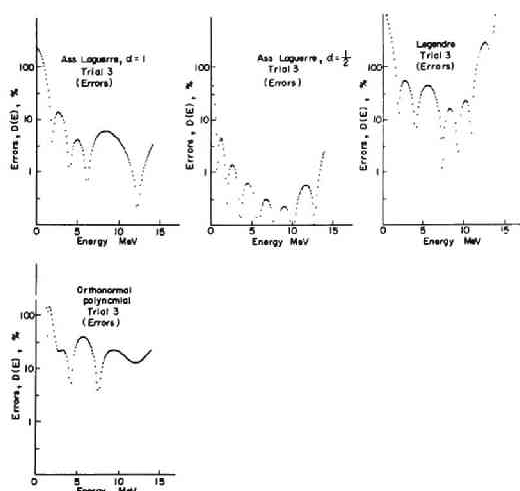


図 2-10 4 種類の解析法により硬化スペクトルを求めたさいの誤差

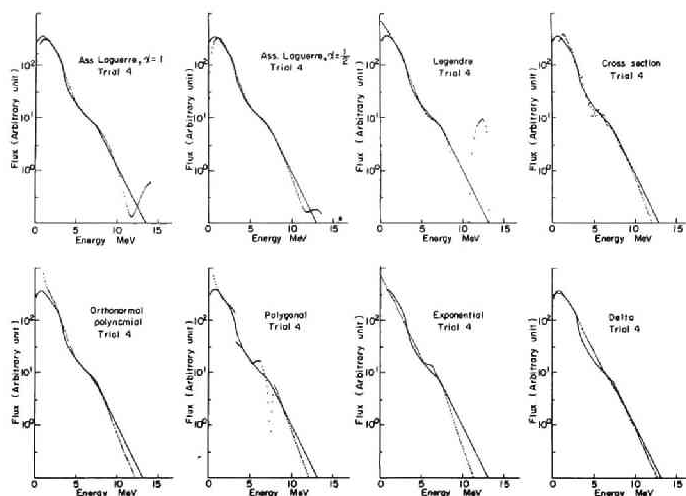


図 2-11 8 種類の解析法により核分裂スペクトルにくぼみのある中性子スペクトルを求めたさいの再生

いずれも陪ラゲール級数展開法に劣ることが分る。このうち断面積直交関数展開法は、やはり上述の硬い中性子スペクトルに対する結果は不良であるが、その他の場合にはほぼ良好である。したがって、このような場合の検討を除けばこの方法は良いという結論を出す恐れがある。一方、ルジャンドル級数展開法は高いエネルギーで中性子スペクトルに振動を生ずることが多い。

次に、ある 1 つのしきい検出器の中性子断面積の値に誤差があった場合、陪ラゲール級

数展開法によって得られた中性子スペクトルの形状はいかなる影響を受けるかについて検討した。いま、使用しているしきい検出器の反応率の値を 1 つずつ 5 % 大きく見積ったとして計算した結果を図 2-15 に示す。この図からみて、僅か 5 % の断面積の差（誘導放射能測定と等価）が相当大きな中性子スペクトルの変化をもたらすことが分る。なかでも、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応や $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応のようにしきい値が被測定中性子スペクトルの中心部にあるものの断面積に誤差がある場合は、 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応のようにしきい値の低いものや $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応の

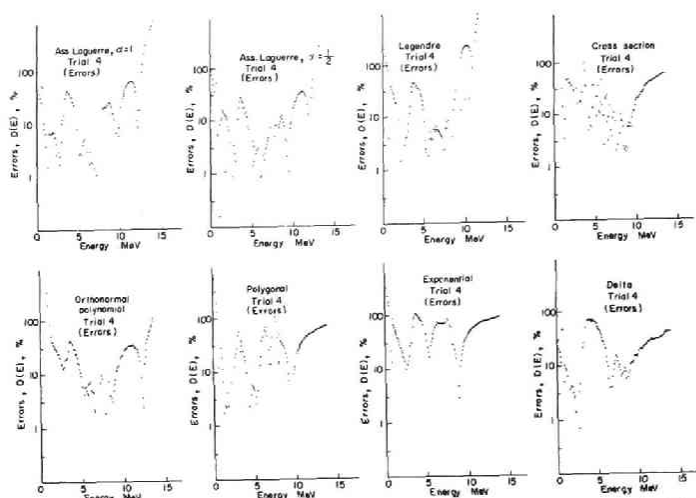


図 2-12 8種類の解析法により核分裂スペクトルにくぼみのある中性子スペクトルを求めたさいの誤差

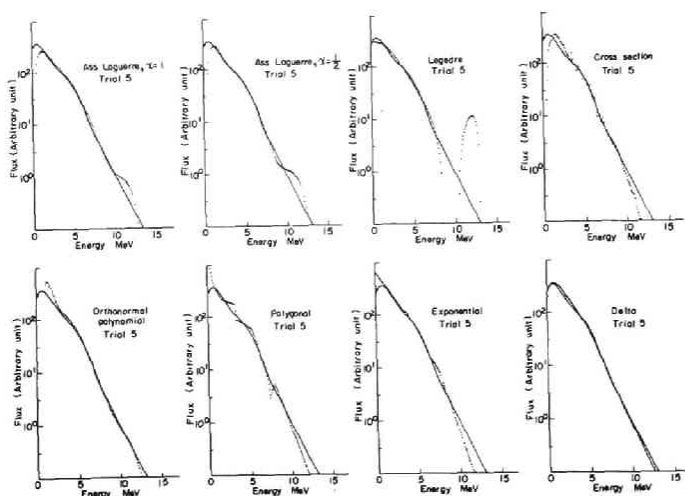


図 2-13 8種類の解析法により核分裂スペクトルにくぼみのある中性子スペクトルを求めたさいの再生

ペクトルはかなり歪められることが明らかとなった。そこで、このような場合における RDMM について検討を加えた。その結果の 1 例を図 2-16 に示す。これは、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応断面積を 5% 大きく見積った場合、核分裂中性子スペクトルに対する再生を示している。ただし、この計算では、図 2-15 の場合と異なり扱う中性子エネルギーの上限を 20MeV にとった。このため、陪ラゲール級数展開法の結

ようにしきい値の高いものの断面積に誤差がある場合よりも、スペクトルの再生により大きな影響を与えることが分る。

最後に、陪ラゲール級数で展開した RDMM について検討した。上述のように、誤差が極めて小さければ展開項数をしきい検出器の数に等しくとった陪ラゲール級数展開法は非常に優秀な方法であり、展開項数をしきい検出器の数より小さくする必要はない。しかしながら、しきい検出器の中性子断面積または誘導放射能の測定値に 5% 程度の誤差があるだけで出力の中性子ス

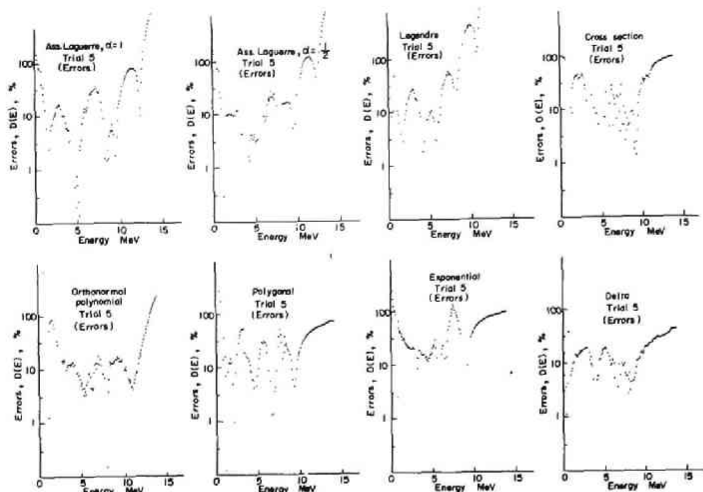


図 2-14 8種類の解析法により核分裂スペクトルにこぶのある中性子スペクトルを求めたさいの誤差

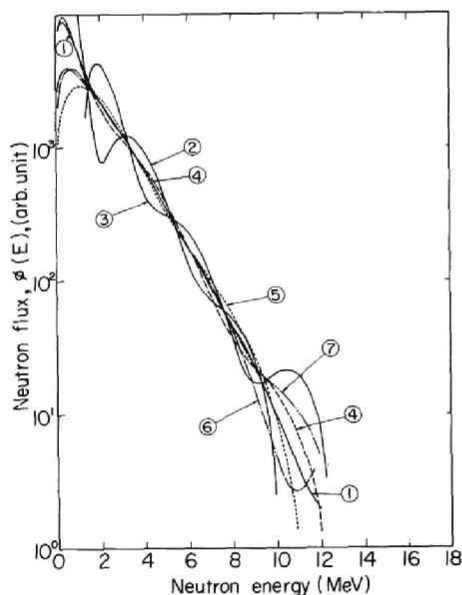


図 2-15 しきい反応を組合せた陪ラゲル級数展開法で核分裂中性子スペクトルを求めたさいに、1つのしきい反応断面積のみ5%大きく見積ったときに出てくる中性子スペクトル:

- ① $^{115}\text{In}(n, n')^{115}\text{In}$ に誤差 ———
- ② $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ に誤差 ———
- ③ $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ に誤差 ———
- ④ $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ に誤差 - - - - -
- ⑤ $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$ に誤差 (dotted)
- ⑥ $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$ に誤差 - · - · -
- ⑦ $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ に誤差 - · - · -

果が図2-15の結果と少し違う。この図からみて、 $^{58}\text{Ni}(n, p)$
 ^{58}Co 反応断面積または誘導放射能の測定値に誤差がある場合には、RDMMの方が明らかに良い。この場合の相対誤差 Q の値は、 $t=7$ ($t=N$) のときと $t=5$ のときとでそれぞれ、

3.044 と 1.316 となる。 $^{115}\text{In}(n, n')$
 $^{115\text{m}}\text{In}$ 反応あるいは $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$

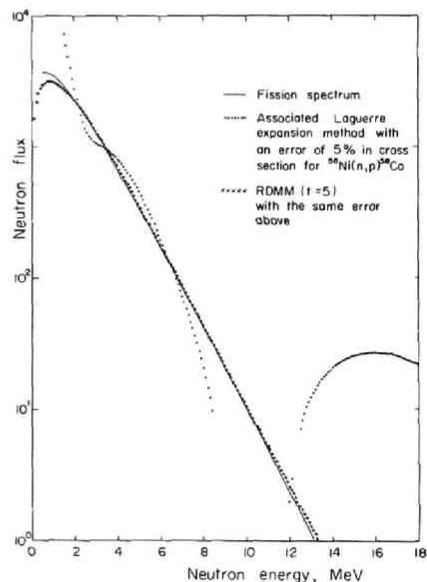


図 2-16 核分裂中性子スペクトルをしきい検出器を組合せた陪ラゲル級数展開法 ($t=N$) と陪ラゲル級数で展開した RDMM ($t=5$) によって求めた場合の比較、たゞし $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応の反応率を 5% 大きく見積った場合

表 2-5 しきい反応による速中性子スペクトル解析の精度 — 積分誤差の表*—

入力スペクトル	積分誤差	積分誤差 $\phi_f \cdot \sigma \pm 0.5E$	積分誤差 $\phi_f \cdot \sigma \pm 0.5E$	積分誤差 スペクトルに くぼみ	積分誤差 スペクトルに こぶ
第ラゲル級数 展開(正規格)	E_1	7.35 (%)	4.86 (%)	6.06 (%)	8.96 (%)
	E_2	4.09	2.90	3.52	5.48
	E_3	10.30	13.43	7.04	15.80
第ラゲル級数 展開(非正規格)	E_1	5.09	0.034	0.57	8.26
	E_2	3.19	0.021	0.33	6.51
	E_3	4.69	0.231	0.65	9.56
ルジャンドル 級数展開	E_1	9.22	5.96	29.67	9.84
	E_2	5.17	3.57	14.41	6.49
	E_3	3.17	4.83	31.98	17.62
断面積直交 関数展開	E_1	27.81	大	大	33.26
	E_2	20.21	大	大	25.61
	E_3	21.77	大	大	29.07
単純級数直交 関数展開	E_1	21.13	17.48	33.13	22.75
	E_2	15.10	14.33	20.84	16.83
	E_3	14.97	11.68	41.09	18.65
多角形近似	E_1	16.25	15.50	734.88	15.15
	E_2	10.60	10.01	369.05	10.33
	E_3	27.59	145.76	839.74	35.14
指数関数近似	E_1	22.23	大	大	31.69
	E_2	12.97	大	大	17.38
	E_3	37.53	大	大	59.10
デルタ関数近似	E_1	10.01	大	98.84	15.06
	E_2	5.76	大	40.02	8.53
	E_3	8.56	大	98.94	37.32

* 積分は $E=1.6\text{MeV} \sim 8.1\text{MeV}$ の間で行った。エネルギーは 0.1MeV ずつに分割した

も同様のことが分った。

したがって、しきい検出器のしきい反応断面積の値あるいは誘導放射能測定値にかなりの誤差があると考えられる場合には、RDMMを加味した第ラゲル級数展開法を使用するのが良い。

第 4 節 原子炉の高速中性子スペクトル測定への応用

しきい検出器を実際の原子炉の高速中性子スペクトル測定に応用した。実験は京大原子炉 KUR の実験孔および炉心内において行なった。

まず第 1 に、KUR の実験孔 (E-3) におけるしきい検出器の照射位置を図 2-17 に示す。しきい検出器としては、前述の 7 種類のものを使用した。誘導放射能の測定は、主として Ge (Li) カウンタにより、 γ 線を測定する方法をとった。この Ge (Li) カウンタの γ 線検出効率は IAEA 製の標準線源によって校正した。図 2-18 はこのようにして校正した有効体積 2 cc の Ge (Li) カウンタの γ 線に対する光電ピーク効率を示す。なお、 ^{32}P のみは GM カウンタによって β 線を計数した。この場合、アルミ吸収板によって ^{35}S および ^{33}P からの低エネルギー β 線を排除した。なお、この GM カウンタの β 線検出効率は、KUR 炉心内で照射したイオウを標準の線源として使用した。

反応断面積に誤差があるとした場合にも、 $^{58}\text{Ni} (n, p) ^{58}\text{Co}$ 反応ほどではないが、いずれも同様のことが認められた。さらに、入力的高速中性子スペクトルが核分裂中性子スペクトル以外の場合について

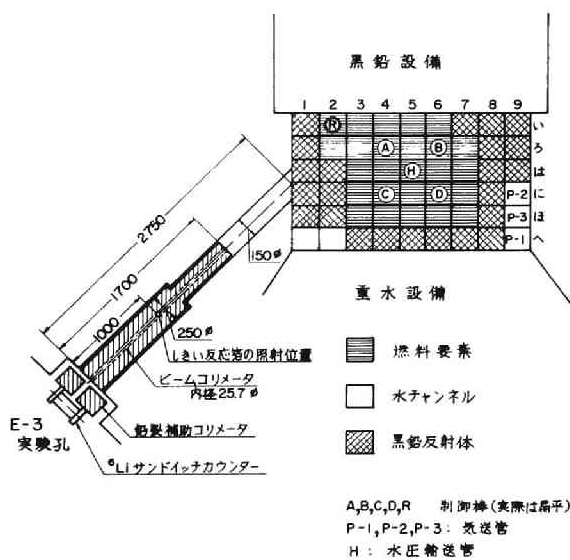


図 2-17 KUR炉心部と E-3 実験孔の配置

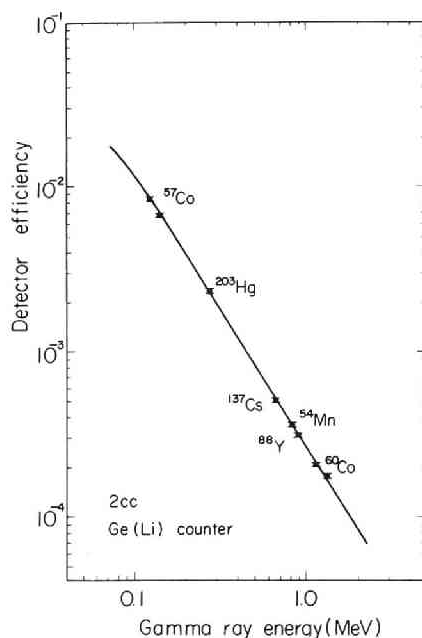


図 2-18 使用した Ge (Li) カウンタの γ 線光電ピーク効率

使用したしきい検出器の核データおよび Ge (Li) カウンタによる γ 線測定結果をそれぞれ 表 2-6 ~ 2-11 および 図 2-19 ~ 2-22 に示す。

表 2-6 $^{115}\text{In} (n, n') ^{115\text{m}}\text{In}$ 反応核データ

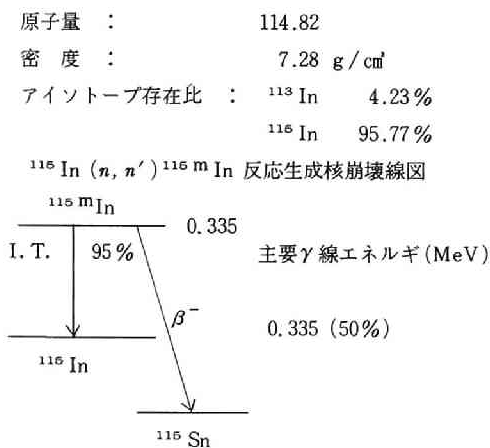


表 2-7 $^{32}\text{S} (n, p) ^{32}\text{P}$ 反応核データ

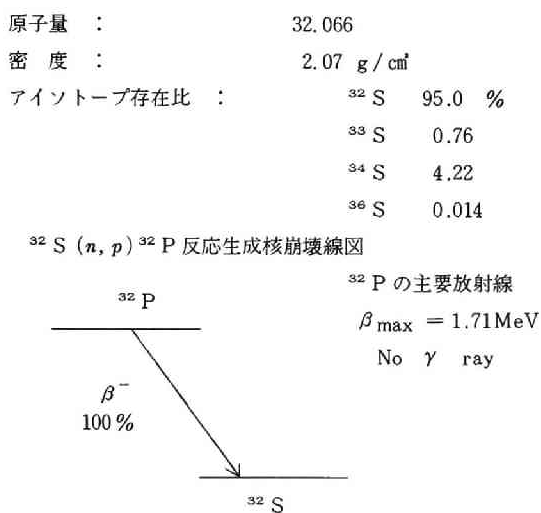
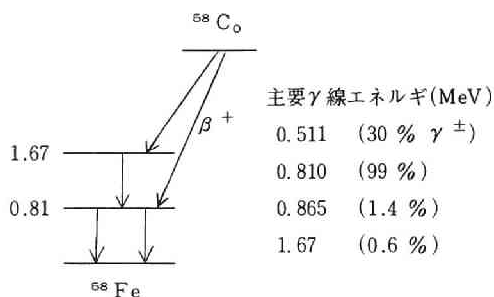
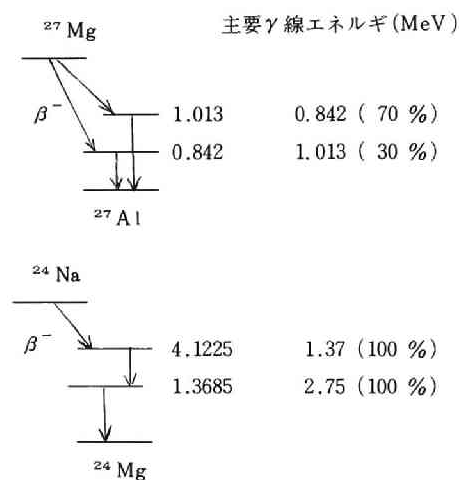


表 2-8 $^{58}\text{Ni} (n, p) ^{58}\text{Co}$ 反応核データ

原子量 :	58.69
密度 :	8.86 g/cm ³
アイソトープ存在比 :	^{58}Ni 67.76 %
	^{60}Ni 26.17 %
	^{61}Ni 1.25 %
	^{62}Ni 3.66 %
	^{64}Ni 1.16 %

 $^{58}\text{Ni} (n, p) ^{58}\text{Co}$ 反応生成核崩壊線図表 2-9 $^{27}\text{Al} (n, p) ^{27}\text{Mg}$ および $^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$ 反応核データ

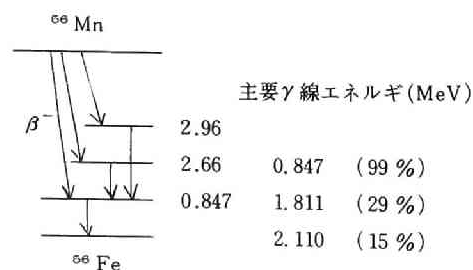
原子量 :	26.97
密度 :	2.699 g/cm ³
アイソトープ存在比 :	^{27}Al 100 %

 $^{27}\text{Al} (n, p) ^{27}\text{Mg}$ および $^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$ 反応生成核崩壊線図表 2-10 $^{24}\text{Mg} (n, p) ^{24}\text{Na}$ 反応核データ

原子量 :	24.32
密度 :	1.74 g/cm ³
アイソトープ存在比 :	^{24}Mg 78.7 %
	^{25}Mg 10.13 %
	^{26}Mg 11.17 %

 $^{24}\text{Mg} (n, p) ^{24}\text{Na}$ 反応生成核崩壊線図表 2-11 $^{56}\text{Fe} (n, p) ^{56}\text{Mn}$ 反応核データ

原子量 :	55.85
密度 :	7.86 g/cm ³
アイソトープ存在比 :	^{54}Fe 5.84 %
	^{56}Fe 91.86 %
	^{57}Fe 2.19 %
	^{58}Fe 0.31 %

 $^{56}\text{Fe} (n, p) ^{56}\text{Mn}$ 反応生成核崩壊線図

KUR実験孔(E-3)における高速中性子スペクトル測定の結果を図2-23に示す。しきい検出器を用いた陪ラゲール級数展開法の結果は、前述の計算機実験で用いた入力スペクトルNo.4に似た核分裂スペクトルにくぼみのある形状となった。

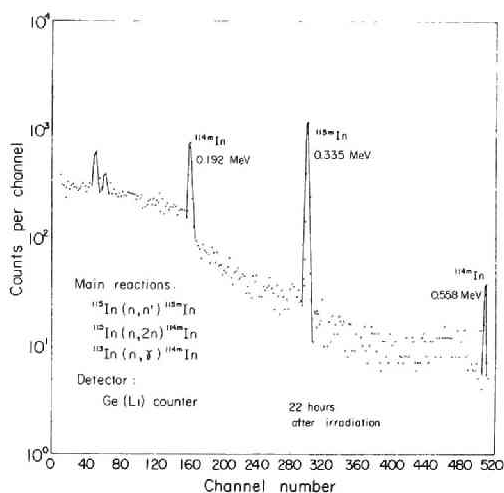


図 2-19 KURで照射したインジウム箔のγ線スペクトル

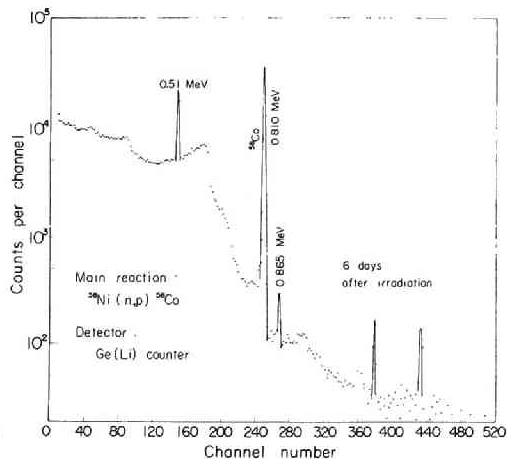


図 2-20 KURで照射したニッケル箔のγ線スペクトル

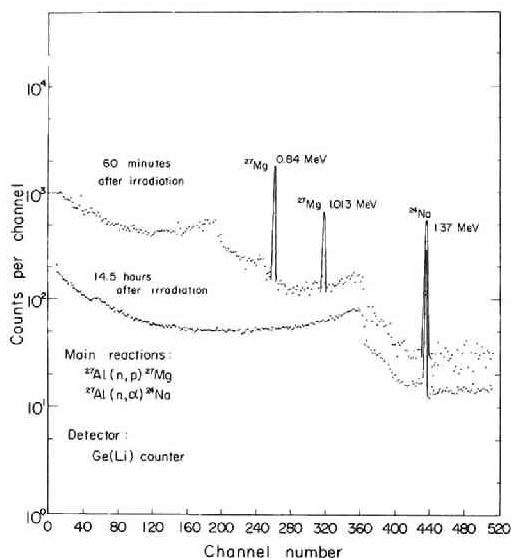


図 2-21 KURで照射したアルミ箔のγ線スペクトル

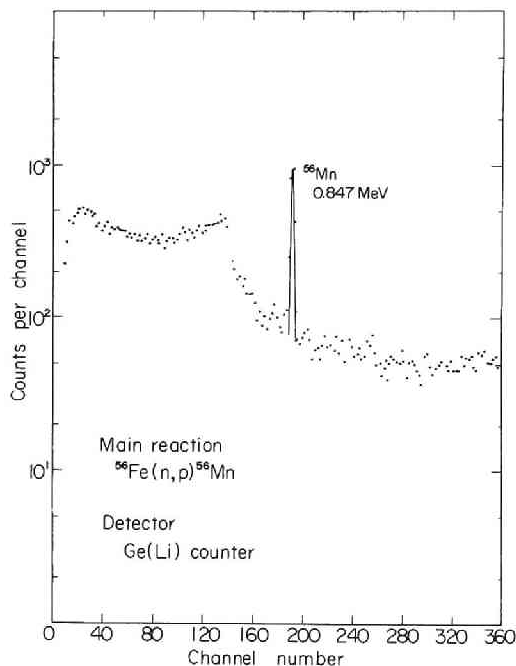


図 2-22 KURで照射した鉄箔のγ線スペクトル

図 2-17に示すように、この実験孔と炉心内の燃料部分との間には厚さ約14cmの黒鉛反射体があり、その外部に約45°の角度で接した構造となっている。したがって、この位置における高速中性子スペクトルは核分裂中性子が黒鉛を透過した場合に近いものと考えられる。そこでこの高速中性子スペクトルは核分裂中性子スペクトルの平面中性子源に接して厚さ14cmの黒鉛が存在するとして、中性子輸送方程式の数

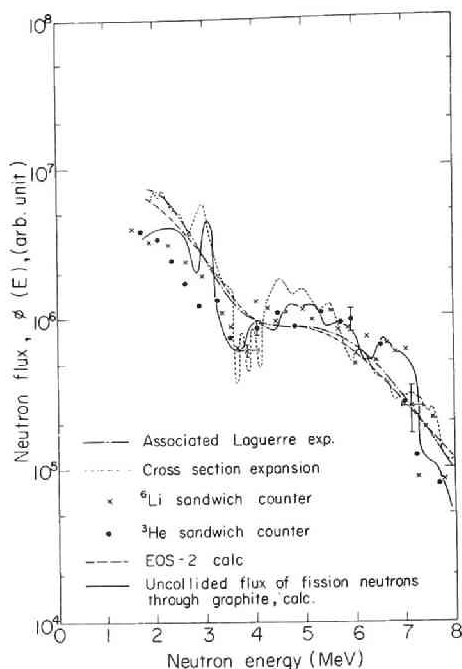


図 2-23 2, 3 の方法によって求められた KUR
E-3 実験孔の高速中性子スペクトル

値解析コード E O S - II ⁴²⁾ を用いて計算した。その結果は同じ図の中に示すように、陪ラゲール級数展開法による結果に近い。また、厚さ 14 cm の黒鉛層透過について、全断面積を用いた指数関数減衰の計算結果も同時に示す。この結果は、陪ラゲール級数展開法の結果や E O S - II による計算結果とはかなり相違する。さらに、次章において述べる ⁶Li サンドイッチカウンタによる高速中性子スペクトル測定結果も同じ図の中に示してある。この場合には、黒鉛の全断面積に見られる 4.5 MeV 近傍のピークによって生ずる中性子スペクトルのくぼみがはっきり見う

けられ全断面積を用いた指数減衰とした計算結果に近い。しかしながら、陪ラゲール級数展開法による結果ではこのくぼみは顕著に現われていない。一方、断面積を直交化した級数展開法による結果では 3.5 MeV ~ 4.0 MeV のエネルギー領域でくぼみが現われていることが注目される。このように実験値および計算値間の一致はあまり良好ではないが、KUR の実験孔 (E-3) における高速中性子スペクトルの概形を知ることができた。

次に、KUR 炉心内の高速中性子スペクトルの測定を行なった。この場合、しきい検出器はアルミの枠にとりつけて燃料要素の中に挿入して照射した。照射のさいの原子炉の出力および照射時間は ¹¹⁵In (n, n') ¹¹⁵mIn 反応のみ 1 kW、30 分としその他のしきい検出器は 100 kW、30 分照射とした。なお、この場合のしきい検出器として ³²S (n, p) ³²P 反応は使わず、¹⁰³Rh (n, n') ¹⁰³mRh 反応を使用した。その断面積は本論文 第 IV 章 で求めた値を使用した。

求められた高速中性子スペクトルの結果を図 2-24 に示す。この図からみて、K

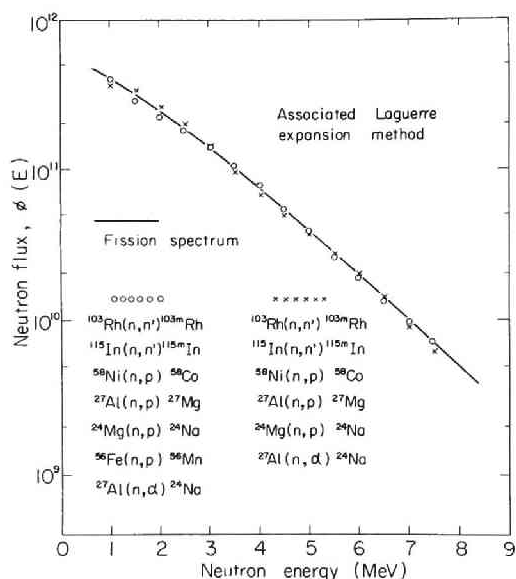


図 2-24 しきい反応を組合せた陪ラゲール級数展開法で求めた KUR 炉心内の高速中性子スペクトル

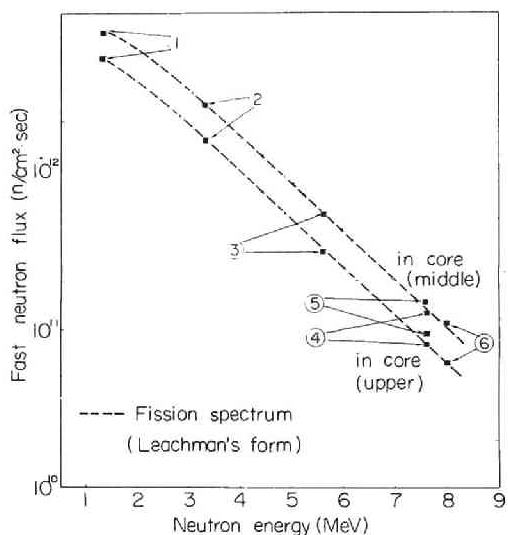


図 2-25 しきい反応によって求めた KUR 炉心内の高速中性子の積分スペクトル

UR 炉心内の高速中性子スペクトルは核分裂スペクトルに非常に近いことが分る。ここに示した結果は互に独立して 2 回測定したものであり、いずれも核分裂中性子スペクトルからの偏差は最大 10 % である。

さらに正確を期すために、Hughes の積分中性子スペクトル法¹²⁾により KUR の炉心内の高速中性子スペクトルを求めてみた。その結果を図 2-25 に示す。この図からみても KUR の炉心内の高速中性子スペクトルは核分裂中性子スペクトルに近い。このことは、さらに次章でも、 ^6Li サンドイッチカウンタおよび原子核乾板による測定および理論計算によって確認される。

このように KUR の炉心内は、核分裂中性子スペクトルに近いので、これを標準高速中性子スペクトル場として使用することができる。これをしきい反応平均断面積の測定に応用した結果は第 V 章において述べる。

第5節 結 言

しきい検出器を用いた原子炉の高速中性子スペクトル測定法について検討するとともに、これを実際の原子炉に応用して炉心内や実験孔から流出する高速中性子スペクトルを求めた。

本章で得られた知見を箇条書きすると次のとおりである：

(1) 核分裂中性子スペクトルの実験式を第1項あるいは重率関数とした陪ラゲール級数により高速中性子スペクトルを展開する方法を提案した。さらに、この方法を7種類のしきい反応により、核分裂中性子スペクトルおよび、これから変形した4つの試算中性子スペクトルを測定した場合、いかにこれらを再生できるかを計算機実験によって検討した。その結果、陪ラゲール級数展開法が、もっとも優れていることが示された。

(2) 使用するしきい検出器のうちどれか1つの反応率に誤差がある場合、陪ラゲール級数展開法による高速中性子の再生がいかなる影響を受けるかについて検討した。その結果、しきい値が被測定中性子スペクトルの中心部にあるものの反応率に誤差がある場合の方が、しきい値の低いものや高いもの場合に比べて再生が良くないことが分った。さらに、陪ラゲール級数で展開した RDMM について同様の検討を行ない、誤差がある場合には RDMM が優れていることを示した。

(3) 陪ラゲール級数展開法を応用し、KURの実験孔および炉心内の高速中性子スペクトルを求めた。KURの実験孔における高速中性子スペクトルの結果は他の方法による実験結果や理論計算の結果とほぼ一致した。たゞ、陪ラゲール級数展開法ではこの実験孔の高速中性子スペクトルとして予想され、また他の方法では確認された4.5MeV近傍におけるくぼみまでは顕著に現われなかった。一方、炉心内の高速中性子スペクトルは核分裂中性子スペクトルに10%以内で一致することを明らかにした。

(4) しきい検出器の誘導放射能の測定は、一部の例外を除き、すべてGe(Li)カウンタを採用した。これによって、従来よく用いられてきたNaI(Tl)シンチレーションカウンタより遙かに優れたγ線エネルギー分解能が得られ、被測定核の同定と

その放射能の絶対値決定が非常に容易になった。

(参 考 文 献)

- 1) I. Kimura, K. Kobayashi and T. Shibata : Ann. Reports, Research Reactor Institute, Kyoto Univ., 1, 95 (1967 / 68).
- 2) 木村逸郎, 小林捷平, 柴田俊一: しきい検出器による速中性子スペクトル測定, KURRI-TR-27 (1967).
- 3) IAEA Technical Reports Series, No.46, *In-Pile Dosimetry*, IAEA, Vienna, 1965.
- 4) *Report of IAEA Panel on Nuclear Standards for Neutron Measurements*, IAEA, Vienna, 1968.
- 5) W. L. Zijp : "Review of Activation Methods for the Determination of Fast Neutron Spectra", RCN-37 (1965).
- 6) G. Di Cola and A. Rota : Nucl. Sci. Eng., 23, 344 (1965).
- 7) C. L. Greer and J. V. Walker : *Proc. International Conf. on Radiation Measurements in Nuclear Power*, p. 270, Institute of Physics and Physical Society, London, 1966.
- 8) W. N. McElroy, S. Berg and G. Gigas : Nucl. Sci. Eng., 27, 533 (1967).
- 9) R. Gold : *ibid.*, 20, 493 (1964).
- 10) J. Grundl and Usner : *ibid.*, 8, 598 (1960).
- 11) O. W. Dietrich and J. Thomas : *Proc. IAEA Symp. on Physics of*

- Fast and Intermediate Reactors*, Vol. 1, p. 377 (1963) .
- 12) D. J. Hughes : *Pile Neutron Research*, p. 93, Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Cambridge, 1953 .
 - 13) G. S. Hurst et al. : *Rev. Sci. Instr.*, **27**, 153 (1956) .
 - 14) W. N. McElroy et al. : *Nucl. Sci. Eng.*, **36**, 15 (1969) .
 - 15) J. B. Trice : "Preliminary Report of Analytical Method for Measuring Neutron Spectra," APEX - 408 (1957) .
 - 16) G. J. Fischer : *Nucl. Sci. Eng.*, **7**, 355 (1960) .
 - 17) P. Delattre : CEA-1979 (1961) .
 - 18) W. Köhler : *Atomkernenergie*, **15**, 263 (1970) .
 - 19) P. M. Uthe : WADC - TR - 57 - 3 (1957) .
 - 20) G. L. Brownell et al. : *Proc. IAEA Symp. on Neutron Dosimetry*, Vol. 1, p. 51 (1963) .
 - 21) J. C. Ringle : "A Technique for Measuring Neutron Spectra in Range 2.5 to 30 MeV Using Threshold Detectors," UCRL - 10732 (1963) .
 - 22) S. R. Hartmann : "A Method for Determining Neutron Flux Spectra from Activation Measurements," WADC - TR - 57 - 375 (1957) .
 - 23) W. D. Lanning and K. W. Brown : "Calculation and Measured Neutron Energy Spectral Distributions Using the Threshold Detector Technique," WAPD - T - 1380 (1961) .

- 24) W. D. Lanning : Trans. American Nucl. Soc., **6** No.1, 35 (1963).
- 25) K. Kanda and A. Furuhashi : J. Nucl. Sci. Technol., **1**, 363 (1964).
- 26) H. Ibarra and R. Sher : Nucl. Sci. Eng., **23**, 197 (1965) .
- 27) R. Dierckx : Nucl. Instr. Meth., **15**, 355 (1962) .
- 28) M. Bresesti et al. : *Proc. IAEA Symp. on Neutron Dosimetry*,
Vol. 1, p.27 (1963) .
- 29) O. Chiocchio, R. Dierckx and G. Maracci : Nucl. Instr. Meth., **91**,
45 (1971) .
- 30) G. BenDavid et al. : Nucl. Sci. Eng., **20**, 281 (1964) .
- 31) K. Fährmann : "*Bestimmung schneller Neutronenspektren in Eisen
mittels Schwellwertdetektoren*", ZfK - RN 27 (1964) .
- 32) J. P. Genthon : CEA - R - 2403 (1964) .
- 33) F. Ebersoldt : J. Nucl. Energy, **22**, 665 (1968).
- 34) A. Fabry : Nukleonik, **10**, 280 (1967) .
- 35) J. A. Grundl : Nucl. Sci. Eng., **31**, 191 (1968) .
- 36) W. N. McElroy : *ibid.*, **36**, 109 (1969) .
- 37) A. M. Bresesti et al. : *ibid.*, **40**, 331 (1970) .
- 38) L. Cranberg et al. : Phys. Rev., **103** 662 (1956) .
- 39) H. Liskien and A. Paulsen : "*Compilation of Cross Sections for
Some Neutron Induced Threshold Reactions*", EUR 119e (1963) .

- 40) H. C. Martin et al. : Phys. Rev., **93**, 199 (1954) .
- 41) K. H. Beckurts and K. Wirtz : *Neutron Physics*, Springer - Verlag, Berlin, 1964.
- 42) K. Takeuchi and I. Kataoka : J. Nucl. Sci. Technol., **3**, 39 (1966) .

第Ⅲ章 ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタによる

高速中性子スペクトル測定法に関する研究^{1)~4)}

第1節 緒 言

1950年代の末、シリコン表面障壁型検出器（以下シリコン検出器と呼ぶ）が実用化するとともに、これを中性子検出器として使用する試みが始められた。シリコンそれ自身の高速中性子反応、例えば ${}^{28}\text{Si}(n, p){}^{28}\text{Al}$ 、 ${}^{28}\text{Si}(n, \alpha){}^{25}\text{Mg}$ 、 ${}^{29}\text{Si}(n, \alpha){}^{26}\text{Mg}$ 反応などを利用して、入射中性子のエネルギースペクトルを求めるという方法も2、3試みられているが^{5)~7)}、これらの反応は生成核がいくつかのエネルギーレベルになるために、単一の入射中性子エネルギーに対する出力パルス波高が複数になり解析が複雑となる。そこで、通常は適当な中性子検出用物質を反跳膜（ラジエータ）としこれからの反跳粒子をシリコン検出器で測定することによって高速中性子スペクトロメータとする場合が多い。高速中性子スペクトロメータ用反跳膜に用いられる反応として、 $\text{H}(n, n)\text{H}$ 、 ${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$ および ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応がある。このほか ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$ 反応もあるが、これは反応生成核 ${}^7\text{Li}$ が励起状態になるものとそうでないものとがあるためスペクトロメータ用には適さない。Dearnaley ら⁸⁾はこれらの反応断面積および高速中性子スペクトロメータの分解能が50keVになる場合の効率の計算値を比較している。まず、これらの反応断面積は図3-1のようになっており、その結果分解能50keVの高速中性子スペクトロメータの効率は図3-2に示すように $\text{H}(n, n)\text{H}$ 反応つまり反跳陽子法がもっとも効率が良く、次いで

${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$ 反応、第3が ${}^6\text{Li}$

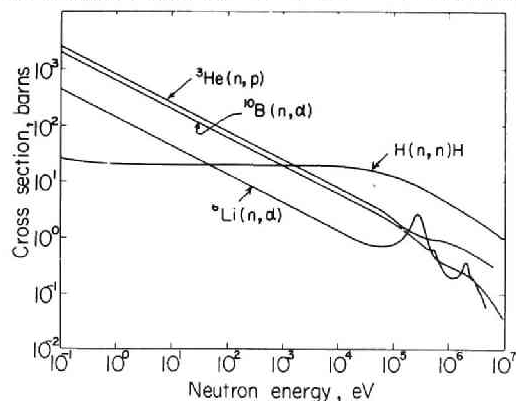


図3-1 中性子検出器によく用いられる反応の断面積 (Dearnaley⁸⁾)

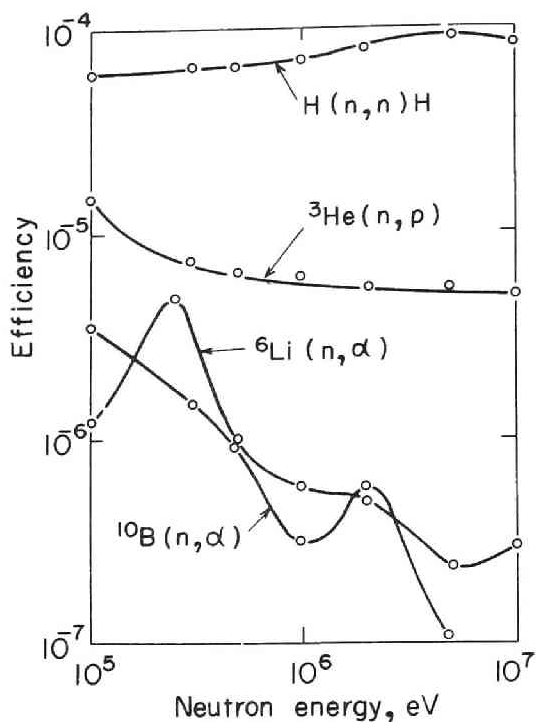


図3-2 中性子スペクトロメータとして分解能が50keVとなる厚さの膜を使用した場合の中性子検出効率 (Dearnaley⁸⁾)

$(n, t)^4\text{He}$ 反応の順になっている。しかしながら ${}^6\text{Li}(n, t)^4\text{He}$ 反応および ${}^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応のQ値を比較するとそれぞれ 4.78 MeV および 0.77 MeVの発熱反応であるのに対し、反跳陽子は入射中性子から反跳エネルギーを受けるのみである。したがって、これらの反応を利用した中性子スペクトロメータを作った場合、大きなQ値の発熱反応のものは出力信号がその分だけ大きくなり、雑音やγ線の信号から弁別しやすくなる。例えば、原子炉の炉心の中やその周辺で高速中性子スペクトルを測定

するような場合には、つねに大線量率のγ線を伴うので、これらの反応の中では ${}^6\text{Li}(n, t)^4\text{He}$ 反応を使用するのが雑音除去の点で有利である。

1961年、Love and Murray⁹⁾ は厚さ $150\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の ${}^6\text{LiF}$ 膜を2枚のシリコン検出器ではさんだ形の高速中性子スペクトロメータすなわち ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタを作り、約300keVのエネルギー分解能を得た。その翌年、Dearnaleyら⁸⁾ は ${}^3\text{He}$ ガスを2枚のシリコン検出器の間に入れたいわゆる ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタを試作して得た結果を発表している。その後、 ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタはいくつかの原子炉や臨界実験装置の高速中性子スペクトロメータとして使用されるようになってきた^{10)~17)}。また、 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの特性に関するいくつかの報告がなされている^{18)~22)}。しかしながらその特性に関しさらに検討すべき問題点がいくつか残されている。とくに、例えば原子炉の実験孔からビーム状に流出する高速中性子のスペクトルを測定するのに必要なデータは不十分である。また、 ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの特性に関する報告も殆んどない。

研究用原子炉の実験孔から流出する高速中性子スペクトルを測定することは、炉心内の高速中性子スペクトルを知る上で重要であるとともに、この中性子ビームを利用した実験を行なうためにも必要である。このため前章に述べたしきい検出器が用いられるが高速中性子スペクトルをより良いエネルギー分解能で求めるためには、 ${}^6\text{Li}$ あるいは ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタを使用するのが適当であると考えられる。しかしながら現在まで これらのカウンタを研究炉の実験孔流出中性子の測定に供した例は殆んど見うけられない※。

本研究では、まず最初に ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率とエネルギー分解能に関する理論的検討を行なう。この場合、原子炉の実験孔から流出する高速中性子のスペクトル測定を目的としている。また、実際にこれらのカウンタを試作して、バンデグラフによる単色中性子やKURの実験孔から流出する中性子によって次のような点に関する実験的検討を加える：(1) 熱中性子に対する応答、出力パルス波高分布、(2) 原子炉出力による分解能の変化、(3) バックグラウンド、(4) エネルギー分解能、(5) 単色の高速中性子に対する応答、エネルギーと出力パルス波高の関係、(6) ${}^3\text{He}$ カウンタでは、 ${}^3\text{He}$ ガス圧と効率の関係。

しかるのち、 ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタによって、KURの実験孔から流出する高速中性子のエネルギースペクトルを測定し、その結果を前章に述べたしきい検出器による測定結果や原子核乾板による測定結果と比較する。また、理論計算によって求めた高速中性子スペクトルとも比較検討する。とくに、KURの炉心配置が実験孔の高速中性子スペクトルに及ぼす影響について検討する。また、KURの炉心内高速中性子スペクトルを実験孔を通じて求めることにより、標準中性子場としてのKUR炉心の特性を明らかにし、第V章における実験の基礎データを供する。

最後に、黒鉛や鉄など、2、3の原子炉材料を透過した高速中性子スペクトルの測定に ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタを応用した結果について述べる。これによって、

※ 極く最近、Yang and Yen ²³⁾ が台湾のTHOR炉の実験孔の高速中性子スペクトルを ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタで測定したと報告している。彼らはこの報告の中で、このような測定を行なったのはこれが最初であると述べているがこれは誤りである。何故なら本著者はすでにKURでの実験をこのときすでに報告していた ⁴⁾

これらの材料の中性子全断面積の値が検討できる。

第2節 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタ

2.1 カウンタヘッドと測定回路

${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの検出部（これをカウンタヘッドと呼ぶ）は、原子炉の実験孔における高速中性子スペクトルの測定を目的にしたため、シリコン検出器の間隔を相当大きくとり、シリコン検出器には原子炉の炉心からくる中性子や γ 線のビームが直接当たらない構造とした。このような形式のカウンタを shielded diode 型¹⁰⁾²⁰⁾と称することがある。

カウンタヘッドとして次の3種類のものを製作した。まず第1は、比較的大型のアルミケースを用いたものである。これは各種の自作のシリコン検出器が容易に取り付けられる構造である。これを図3-3に示す。次に代表的なカウンタとして、

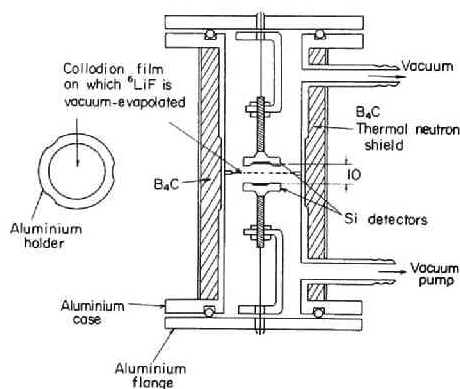


図3-3 最初の段階でいろいろな特性をとるのに用いた ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのヘッド

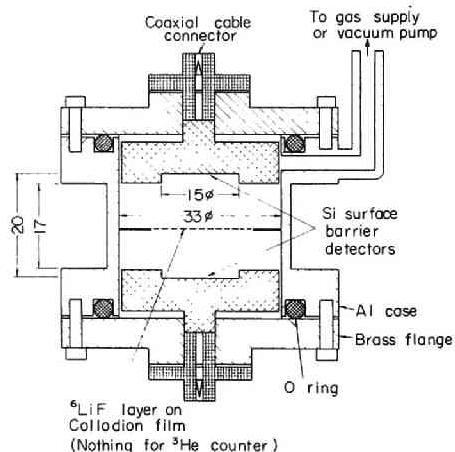


図3-4 よく用いた ${}^6\text{Li}/{}^3\text{He}$ 共用カウンタのヘッド

図3-4および図3-5に示すようなものを試作した。これは、米国ORTEC社のシリコン検出器が丁度ふたの部分にコネクタ金具により固定できる構造になっている。2個のシリコン検出器表面間の距離は通常20mmある。これら2つのカウンタハ

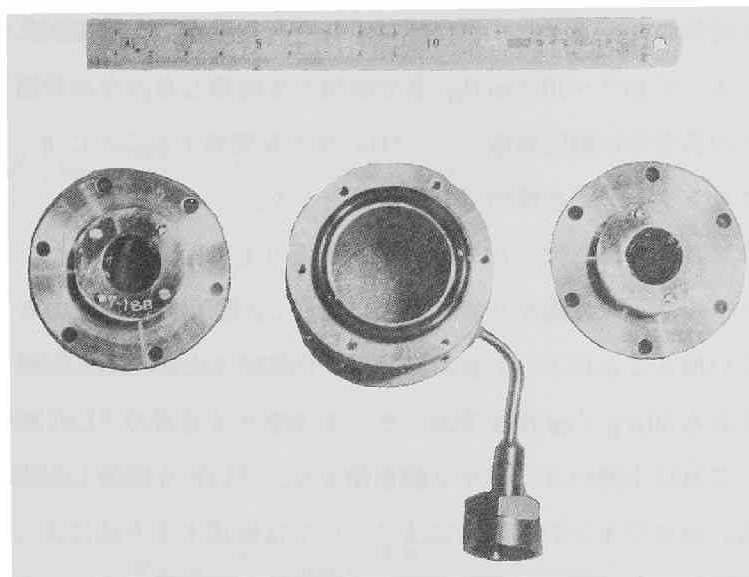


図3-5 ${}^6\text{Li}/{}^3\text{He}$ 共用カウンタヘッドの写真、フランジにはシリコン検出器が取り付けられている

ッドとも、シリコン検出器の中央部に ${}^6\text{LiF}$ を真空蒸着したコロジオン膜が固定されており、バックグラウンドを測定する場合にはカウンタヘッドのふたを外して、この ${}^6\text{LiF}$ 付コロジオン膜をとり外し、その代りに ${}^7\text{LiF}$ 付コロジオン膜などを取付けることが必要であった。このような操作を容易にするために、第3のカウンタ

は非常に大型の容器として、この中に直流ギヤドモーターを組み込んであり、回転円板上に取り付けられた ${}^6\text{LiF}$ 付コロジオン膜と ${}^7\text{LiF}$ 付コロジオン膜が、外部から自動的に置換できる構造とした¹⁰⁾。その断面図は図3-6のようになっている。 ${}^6\text{LiF}$ や ${}^7\text{LiF}$ 付コロジオン膜の位置はマイクロスイッチによって決定した。このカウンタは鉛および炭化ほう素(B_4C)

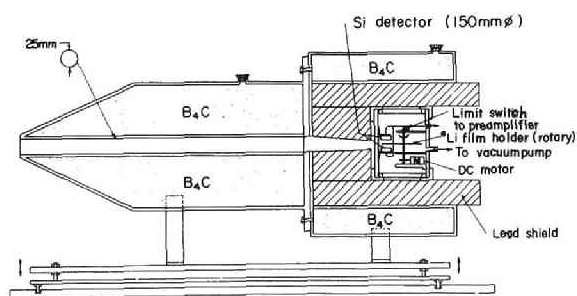


図3-6 Shielded diode 型 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの断面図

入り容器で覆われているので周辺からの中性子や γ 線がしゃへいされている。

これら3種類のカウンタヘッドにはいずれも真空引き口が溶接されており、油回転ポンプによって $10^{-1} \sim 10^{-2}$ mm Hg まで排気して使用した。なお、第2のカウンタヘッドとその真空系は耐圧構造とし、 ^3He ガスを充填することによって ^3He サンドイッチカウンタとしても使用できるものとした。

^6LiF はアルミ棒に取付けたコロジオン薄膜の上に真空蒸着した。コロジオンはエーテルとアルコールに溶かして水面上に点滴し、固化せしめたのち、アルミ棒によってすくい取ることによって容易に薄膜が作成できた。使用した膜の厚さは通常 0.4μ すなわち $30\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度であった。この厚さは通常の ^6LiF 膜の厚さより遙かに薄い。これ以上薄いコロジオン膜を作ると、 ^6LiF を蒸着した場合、極めて破れ易くなる。コロジオンの膜厚決定法については後述する方法によった。

^6LiF としては、米国 Harshaw Chemical Co. 製、熱ルミネッセンス用試料 TLD-600 ($^6\text{Li} = 95.62\%$) 粉末を使用した。また、バックグラウンド測定用には同社製の ^7LiF 粉末を使った。蒸着に先立ち、 ^6LiF 粉末は黒鉛ルツボで融かして固型化し、これをタンタルヒーター上で加熱して、コロジオン膜上に真空蒸着した。

^6LiF の膜厚については真空蒸着のさいの幾何学的条件から推定できるが さらに正確な値を得るために、 ^{241}Am の α 線透過によるエネルギー変化を測定する方法 (α 線厚み計) をとっている。コロジオンの膜厚もこの方法で求めている。以下この方法の概要を述べる。

物質中における α 線のエネルギー吸収は、次に示す Bloch-Bethe の式に従う：

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2 NB}{mv^2} \quad (3.1)$$

ただし、ここで、

E : 入射粒子のエネルギー,

x : 入射粒子の入射方向の距離,

e : 電子の電荷, 4.8×10^{-10} e.s.u.,

ze : 入射粒子の電荷,

N : 吸収物質の原子密度,

m : 電子の質量,

v : 入射粒子の速度.

B はふつう阻止能といわれ、次のようにかける：

$$B = Z \left\{ \log \frac{2 m v^2}{I} - \log (1 - \beta) - \beta^2 \right\}, \quad (3.2)$$

ここで、

Z : 吸収物質の原子番号,

I : 吸収物質の励起、電離エネルギー,

β : v/c , ただし、 c は真空中での光速.

$\beta \ll 1$ の場合、(3.1) 式を少し書き換えると、

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{2 \pi e^4 z^2 N Z \log \left(\frac{4 m E}{I M} \right)}{\rho \frac{m}{M} E}, \quad (3.3)$$

ここで、

M : 入射粒子の質量,

ρ : 吸収物質の比重.

吸収物質についての正確な I の値は実験的に求めなければならないが、あまり多くの実験データはない。さらにまた、入射粒子のエネルギーが低くなると、(3.1) 式は成立しなくなってくるので、エネルギー損失率、 $-\frac{dE}{dx}$ そのものを実験的に求め

表 3-1 励起、電離エネルギー I の値

原 子	励起、電離エネルギー, I	参 考 文 献
${}^6\text{Li}$	36 (e V)	Rydin (25)
F	108	"
H	15.6	Bethe - Ashkin (26)
C	67.6	Allison - Warshaw (27)
N	88.5	"
- O -	87.5	"
= O	78.6	"
Au	810	Evans (28)
${}^3\text{He}$	26	本 論 文 (測定値)
${}^4\text{He}$	24.5	Bethe - Ashkin (26)

ることが必要となる²⁴⁾。ここでは、表 3-1 に示す I の値を使用して、 ${}^6\text{LiF}$ のほか、コロジオン、マイラー（ポリエチレンテレフタレート）、金、 ${}^3\text{He}$ ガスに対する陽子、トリトン（3 重水素原子核）のエネルギー損失率を計算した。図 3-7 および

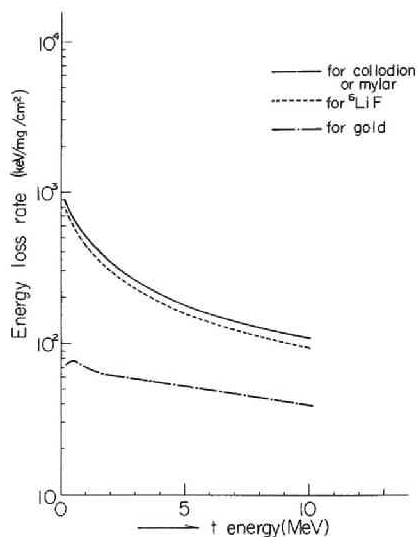


図 3-7 トリトンの物質中におけるエネルギー損失率（計算値）ただし、金（エネルギー < 5 MeV）の場合は実験値を示す

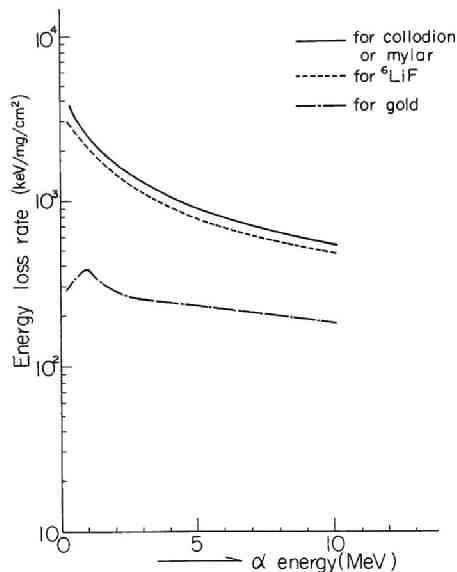


図 3-8 α 粒子の物質中におけるエネルギー損失率（計算値）ただし、金（エネルギー < 5 MeV）の場合は実験値を示す

図 3-8 はそれぞれ、トリトンおよび α 粒子に対するエネルギー損失率である。ただし、金については、荷電粒子のエネルギーが 5 MeV 以下になると Bloch-Bethe の式

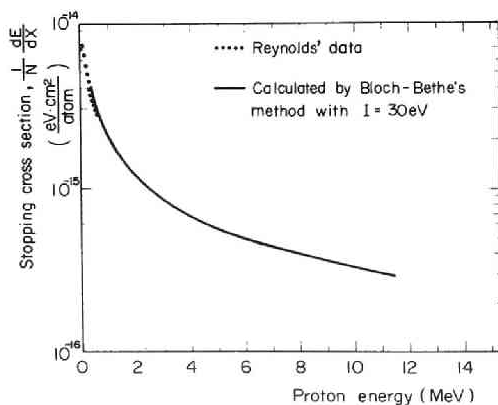


図 3-9 ${}^3\text{He}$ ガス中における陽子のエネルギー損失断面積

が実験値とくいちがうので、実験値²⁷⁾の方を採用した。次に、 ${}^3\text{He}$ ガス中における陽子のエネルギー損失率を原子密度で割ったもの、すなわちエネルギー損失断面積の計算値を図 3-9 に示す。ここで用いた I の値（表 3-1 参照）は ${}^3\text{He}$ ガス中における ${}^{210}\text{Po}$ の α 線のエネルギー損失から求めたものである。また、この場合

も荷電粒子のエネルギーが数百 keV 以下になると Bloch-Bethe の式が成立たなくなるのでやはり生の実験値を使用することが必要となる。ここでは 600 keV 以下については、Raynolds らのデータ²⁹⁾を使った。

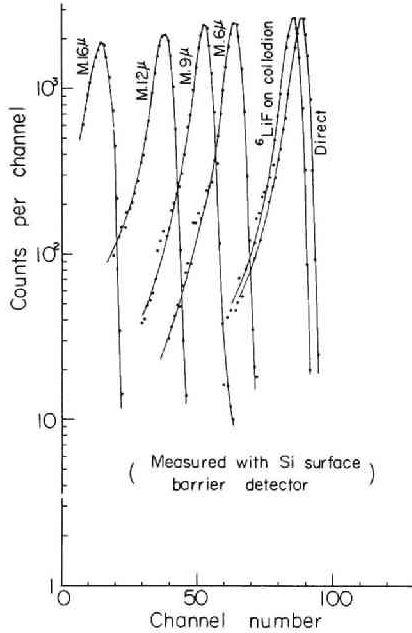


図 3-10 ^{241}Am の α 線が ^6LiF つきコロジオン膜や各種の厚さのマイラー膜を通過した場合におけるエネルギー(パルス波高)の変化

^{241}Am とシリコン検出器を真空容器に収め、この中間に ^6LiF 付コロジオン膜や較正用マイラー薄膜を置いた場合の α 線波高分布を図 3-10 に示す。この図から分るように、マイラー膜の厚さによってパルス波高分布のピークがずれてゆくので、このピークチャンネルのずれから α 線のエネルギー損失を求め、上述のエネルギー損失値と比較することにより膜厚が求められる。すなわち、膜の厚さ x は、

$$x = \int_{E_0}^E \frac{dE}{-\left(\frac{dE}{dx}\right)}$$

$$= \int_{E_0}^E \frac{\rho \frac{m}{M} E dE}{2 \pi e^4 z^2 N Z \log\left(\frac{4 m E}{I M}\right)} \quad (3.4)$$

ここで、 E_0 は線源の α 線エネルギー、 E は試料(厚さ x) 透過後の α 線エネルギーである。この積分を行なった結果を図 3-11 に示す。この図から明らかなように、厚さが既知 (6μ , 9μ , 12μ および 16μ) のマイラーに関する測定値は (3.4) 式で計算した曲線に極めて近いことが分る。同様にして、厚さが未知のコロジオン膜やその上に ^6LiF を蒸着した膜などの厚さを測定することができた。前述のようにコロジオン膜は通常 $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度、 ^6LiF の厚さは例えば 76, 150, 400, $850 \mu\text{g}/\text{cm}^2$

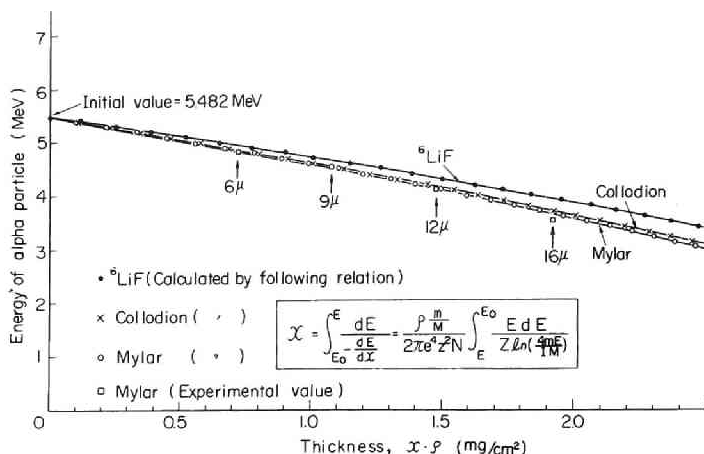


図 3-11 ^{241}Am の α 線が ^6LiF 、コロジオンおよびマイラー膜を通過した場合のエネルギーの変化

150-300 型を主として使用した。これは有感面積 150mm^2 、最大有感厚さ（空乏層の厚さ） 300μ である。またエネルギー分解能は 20keV 程度であった。

測定回路のブロック図を図 3-12 に示す。前置増巾器、和および同時計数装置および主増巾器はいずれも米国

ORTEC 社製のものを使用した。マルチチャンネル波高分析器は外部ゲート可能な機種を用いた。主として、米国 TMC 社製 1024 チャンネルのもの または日立製作所製 400 チャンネルのものである。

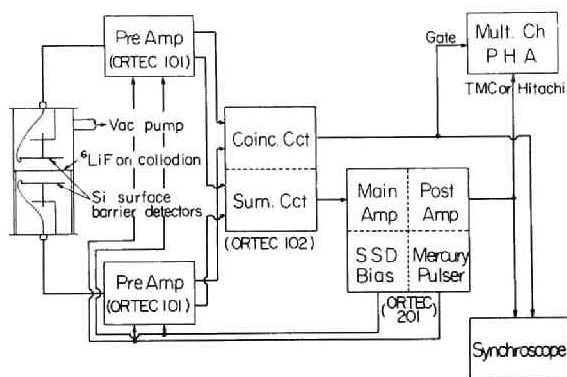


図 3-12 ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタ用測定回路のブロック図

2. 2 検出効率の計算

^6Li サンドイッチカウンタの中性子検出効率を計算によって求めた。計算法として次の 2 つの方法を行ないその結果を比較した。まず第 1 は、 ^6LiF 膜面とシリコン検出器を 2 次元のメッシュに細分し、中性子検出効率をこれらのメッシュの和と

して積算する方法である。これをメッシュ法と呼ぶことにする。第2にはモンテカルロ法である。この場合は ${}^6\text{LiF}$ 膜面上の点およびこの点からみた角度を乱数を使って計算し検出効率を統計的に求める。ここでは、原子炉の実験孔から流出する高速中性子のようなビーム状の入射中性子を対象としたが、これらの計算法はいずれも一般性を有している。

まず、メッシュ法について述べる。いま、図3-13に示すように距離 $2A$ だけ離して置かれた2枚の円形のシリコン検出器（有感部の半径 R ）の中央に円形の ${}^6\text{LiF}$ の膜があり、中性子はこの膜の側面（図では上方向、すなわち $-y$ の方向）から膜に平行に入射するも

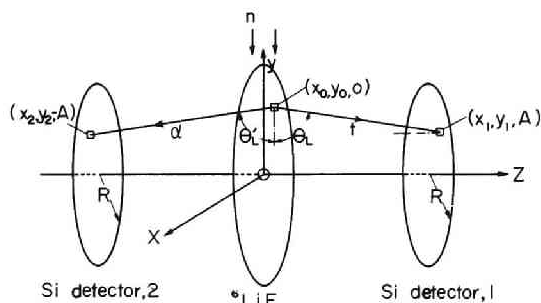


図3-13 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの検出効率計算のための座標系のとり方

のとする。この膜の中心を座標の原点として、 x 、 y 、 z 軸を図のように定める。

計算は次のような手順でこれを行なった：（1） ${}^6\text{LiF}$ 膜上の1点 $(x_0, y_0, 0)$ を中心とした微小部分（面積 $\Delta x_0 \Delta y_0$ ）を選ぶ。（2）右側のシリコン検出器上の1点 (x_1, y_1, A) を中心とした微小部分（面積 $\Delta x_1 \Delta y_1$ ）を選ぶ。（3） ${}^6\text{LiF}$ 膜上の ${}^6\text{Li}$ 原子の面密度 N_0 および ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応の断面積（トリトンの方向に関する角度依存断面積すなわち微分断面積 $p(E, \theta_L)$ ）を知ることにより ${}^6\text{LiF}$ 膜上の $\Delta x_0 \Delta y_0$ に入射した1個の中性子に対し、 ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応で生成するトリトンが右側のシリコン検出器上の $\Delta x_1 \Delta y_1$ へ入り、さらにこの反応で生成する α 粒子が左側のシリコン検出器へ入る確率を求める。（4） ${}^6\text{LiF}$ 膜および右側のシリコン検出器上のメッシュについて積算する。（5）全体を2倍する。これはトリトンについて右側のシリコン検出器入射のみを考えたためである。

この計算にさいして、次のことを仮定している：（1） ${}^6\text{LiF}$ 膜の厚さは無限に薄い。（2）入射中性子束密度は ${}^6\text{LiF}$ 膜上のすべての点において一定である。

(3) ${}^6\text{LiF}$ 膜上の ${}^6\text{Li}$ の面密度 N_6 は一定である。

ここで、2、3の重要な角度について 次のように定義する。

θ_L : 入射中性子の方向と点 $(x_0, y_0, 0)$ と点 (x_1, y_1, A) を結ぶベクトルのなす角度、このベクトルはトリトンの進行方向である、

θ_{CM} : 上記の角度、 θ_L を重心系になおしたもの、

θ'_L : 上記のように、トリトンが θ_L 方向に向うとき、相手の α 粒子が進む方向と入射中性子の方向のなす角度、

θ'_{CM} : 上記の角度、 θ'_L を重心系になおしたもの、

これらの角度は簡単な計算によって次のように表わせる：

$$\theta_L = \tan^{-1} \left\{ \frac{\sqrt{(y_0 - y_1)^2 + A^2}}{(x_0 - x_1)} \right\}, \quad (3.5)$$

$$\theta_{CM} = \sin^{-1} \left\{ \frac{m_1 m_3 E \left\{ (y_0 - y_1)^2 + A^2 \right\}}{m_2 m_4 (E + Q) \left\{ (x_0 - x_1)^2 + (y_0 - y_1)^2 + A^2 \right\}} \right\} + \theta_L, \quad (3.6)$$

$$\theta'_{CM} = \pi - \theta_{CM}, \quad (3.7)$$

$$\theta'_L = \tan^{-1} \left\{ \frac{\sin \theta'_{CM}}{\cos \theta'_{CM} + \sqrt{\frac{m_1 m_3 E}{m_2 m_4 (E + Q)}}} \right\}. \quad (3.8)$$

ただし、ここで

m_1 : 中性子の質量、

m_2 : ${}^6\text{Li}$ の質量、

m_3 : トリトンの質量、

m_4 : α 粒子の質量、

E : 入射中性子のエネルギー、

Q : この反応の Q 値、4.78 MeV.

そして、 α 粒子が左側のシリコン検出器で検出されるかどうかは、その軌跡とシリコン検出器のある平面との交点 $(x_2, y_2, -A)$ が検出器の有感部に入るかどうか

を判定することによって決る。この x_2, y_2 はそれぞれ次のようになる：

$$x_2 = \begin{cases} x_0 - \sqrt{\frac{\cos^2 \theta'_L \{ (y_0 - y_1)^2 + A^2 \}}{1 - \cos^2 \theta'_L}}, & \text{for } \theta'_L \leq \frac{\pi}{2}, \\ x_0 + \sqrt{\frac{\cos^2 \theta'_L \{ (y_0 - y_1)^2 + A^2 \}}{1 - \cos^2 \theta'_L}}, & \text{for } \theta'_L \geq \frac{\pi}{2}, \end{cases} \quad (3.9)$$

$$y_2 = 2y_0 - y_1 \quad (3.10)$$

α 粒子が、左側のシリコン検出器の有感部へ入射する条件は、

$$x_2^2 + y_2^2 < R^2 \quad (3.11)$$

次に $\Delta x_1 \Delta y_1$ が点、 $(x_0, y_0, 0)$ に対しては立体角 $\Delta \Omega$ は、

$$\Delta \Omega = \frac{\sin \phi}{4 \pi \ell^2} \quad (3.12)$$

ただし、ここで

ϕ ：トリトンの進行方向とシリコン検出器のなす角度、

ℓ ：点 $(x_0, y_0, 0)$ と点 (x_1, y_1, A) の間の距離。

結局、エネルギー E の中性子検出効率 $\eta(E)$ は次のようになる：

$$\eta(E) = 2 N_6 \sum_{\substack{{}^6\text{LiF 膜, シリコン検出器} \\ x_2^2 + y_2^2 < R^2}} p(E, \theta_L) \Delta \Omega \Delta x_1 \Delta y_1 \Delta x_0 \Delta y_0, \quad (3.13)$$

以上の過程を ALGOL でプログラムし、京大原子炉実験所の電子計算機、OKITAC-5090H で計算した。

中性子検出効率を大きく支配する因子として、 ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応の断面積がある。この反応は非常に重要な反応として数多くの測定がなされているが、今なお精度はそう高くない。Sowerby³⁰⁾によると、1967年におけるこの断面積の精度は以下のような値であるとされている：(1) 1keV で $\pm 4\%$ 、(2) 10keV で相当大きい、(3) 100keV で $\pm 6\%$ 、(4) 340keV 以下で $\pm 10\%$ 、(5) 340keV

以上で±20%。この値からすると、本研究で対象とする高速中性子の場合±20%もの誤差が存在することになる。しかしながら、エネルギー依存断面積の相対値の誤差はこれより遙かに小さいものと考えられる。この反応のトリトンに関する微分断面積データはさらに乏しく、ごく限られた結果がBNL-400³¹⁾にまとめられているにすぎない。しかも、この場合、2.15MeV以上14MeVまでのエネルギー範囲のデータは殆んどない。ここでは、このように限られたデータを使用することによってトリトンが重心系で等方的に出るとした場合と非等方的に放出されるとした場合について比較した。まず、前者のデータは、BNL-325 (Second edition)³²⁾より ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応断面積を求め、生成するトリトンが重心系で等方とした。次にトリトンに関する非等方性のデータはBNL-400 から採用した。

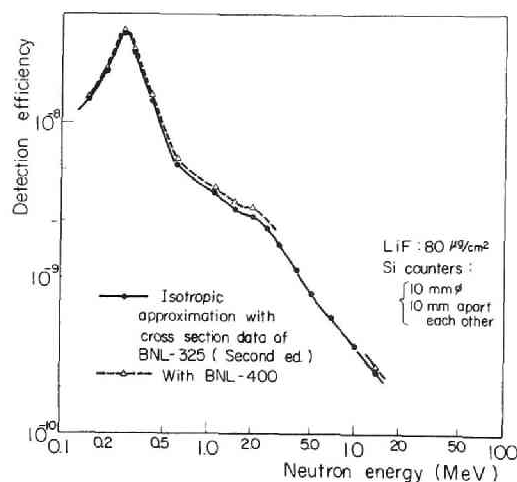


図3-14 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率
(中性子断面積データの違いによる影響の検討)

ら大きい値になっている。

次に、代表的なカウンタ（図3-4および3-5に示したもの）の中性子検出効率の計算値を表3-2および図3-15に示す。ただし、この計算はすべて、トリトンは重心系で等方にでるとしたものである。この図から分るように、ここで使用した shielded diode 型 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率は $10^{-9} \sim 10^{-7}$ と非常に小さい。前述のように、原子炉の実験孔から流出する中性子や γ 線のビームがシリコン検出器に直接入射するのを避けるため、シリコン検出器間隔を大きくと

計算の結果を図3-14に示す。

この図からみて、トリトンが重心系で等方的に出るとした場合とそうでない場合とで ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率曲線の値はあまり変らない。また、中性子エネルギー依存の効率の形状もほぼ同様であることが分る。ただし、より詳細にみると、トリトンの非等方性を考慮した効率の方が、等方とした場合より僅かなが

表 3-2 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率

(計 算 の 条 件)

- (1) ${}^6\text{LiF}$ 膜 : 直径 22mm
- (2) シリコン検出器 : 直径 15mm, 20mm 離れて相対しその中央に ${}^6\text{LiF}$ 膜がある
- (3) ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応断面積 : BNL-325 (Second ed.)
- (4) メッシュ法による計算

中性子エネルギー (MeV)	${}^6\text{LiF}$ 膜 の 厚 さ ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)			
	100	250	500	1,000
1.0	1.10×10^{-8}	2.75×10^{-8}	5.50×10^{-8}	1.10×10^{-7}
2.0	7.58×10^{-9}	1.90×10^{-8}	3.79×10^{-8}	7.58×10^{-8}
4.0	3.83×10^{-9}	9.58×10^{-9}	1.92×10^{-8}	3.83×10^{-8}
8.0	1.74×10^{-9}	4.35×10^{-9}	8.70×10^{-9}	1.74×10^{-8}
14.0	9.16×10^{-10}	2.29×10^{-9}	4.58×10^{-9}	9.16×10^{-9}

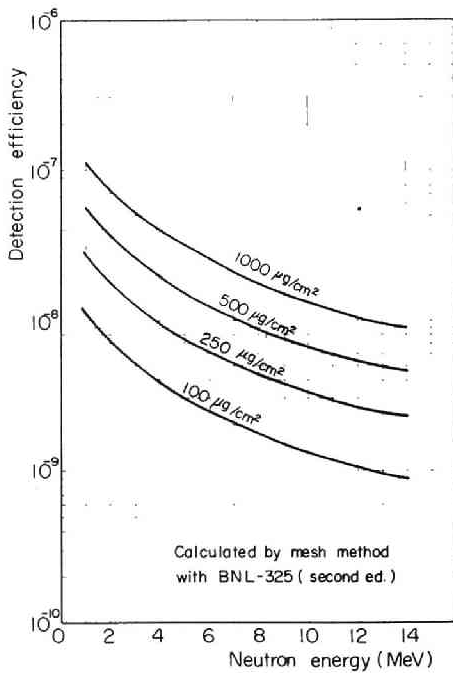


図 3-15 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率
(図 3-4, 3-5 に示したカウンタの場合)

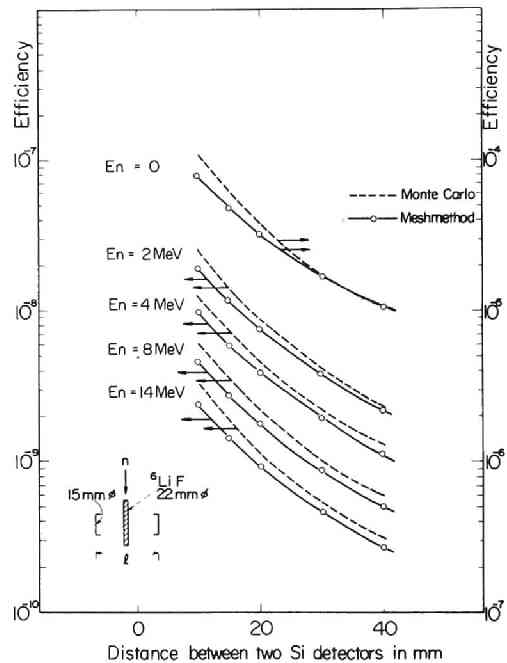


図 3-16 モンテカルロ法およびメッシュ法によって計算した ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率のシリコン検出器間隔に対する依存性

るほど中性子検出効率は著しく低下する。図 3-16 はシリコン検出器間隔と中性子検出効率の関係を示す。密着型の ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタでは、2 MeV の中性子

に対する検出効率は 1×10^{-6} 程度となる。したがって、シリコン検出器間隔を 20mm とすると、中性子検出効率は数十分の 1 に減少する。

次に、モンテカルロ法による効率計算法について述べる。この場合はメッシュ法と異なり ${}^6\text{LiF}$ 膜上の点およびこの点からみた角度を乱数を使って計算する方法である。まず乱数によって、 ${}^6\text{LiF}$ 膜上の点 $(x_0, y_0, 0)$ を求める。次に、この点からみた 2 つの角度 θ_{CM}^t および ϕ を計算した³³⁾：

$$\theta_{\text{CM}}^t = \tan^{-1} \left\{ \frac{\sqrt{1 - (1 - 2R_a)^2}}{1 - 2R_a} \right\}, \quad (3.14)$$

$$\phi = \pi R_a \quad (3.15)$$

ただし、ここで

θ_{CM}^t : 重心系でトリトンの方向と中性子入射方向のなす角度、

R_a : 乱数、2 式それぞれ独立に発生させる。

このあとは、メッシュ法と同様にして、このトリトンとこれに対応する α 粒子がいずれもシリコン検出器で検出されるか否かを判別する。さらに、 ${}^6\text{Li}$ の数および ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応断面積を用いることにより中性子検出効率を算出した。この場

表 3-3 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの効率
—— メッシュ法とモンテカルロ法の比較 ——

(計 算 の 条 件)

(1) ${}^6\text{LiF}$ 膜 : 直径 22mm, 厚さ $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$

(2) シリコン検出器 : 直径 15mm

(3) ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応断面積 : BNL-325(Second ed.)

中性子エネルギー(MeV)	方 法	シリコン検出器間隔 (mm)				
		10	15	20	30	40
1.0	Mesh	2.63×10^{-8}	1.64×10^{-8}	1.10×10^{-8}	5.56×10^{-9}	3.24×10^{-9}
	M. C.	3.45×10^{-8}	2.00×10^{-8}	1.21×10^{-8}	5.66×10^{-9}	3.33×10^{-9}
2.0	Mesh	1.88×10^{-8}	1.17×10^{-8}	7.58×10^{-9}	3.77×10^{-9}	2.18×10^{-9}
	M. C.	2.49×10^{-8}	1.40×10^{-8}	8.74×10^{-9}	4.10×10^{-9}	2.44×10^{-9}
4.0	Mesh	9.91×10^{-9}	5.92×10^{-9}	3.83×10^{-9}	1.93×10^{-9}	1.08×10^{-9}
	M. C.	1.31×10^{-8}	7.46×10^{-9}	4.56×10^{-9}	2.19×10^{-9}	1.37×10^{-9}
8.0	Mesh	4.58×10^{-9}	2.70×10^{-9}	1.74×10^{-9}	8.57×10^{-10}	4.94×10^{-10}
	M. C.	6.14×10^{-9}	3.44×10^{-9}	2.12×10^{-9}	9.91×10^{-10}	5.93×10^{-10}
14.0	Mesh	2.41×10^{-9}	1.41×10^{-9}	9.16×10^{-10}	4.56×10^{-10}	2.61×10^{-10}
	M. C.	3.28×10^{-9}	1.82×10^{-9}	1.15×10^{-9}	5.37×10^{-10}	3.27×10^{-10}

M. C. =モンテカルロ法 Mesh =メッシュ法

合も、ALGOL でプログラムを作り電子計算機 OKITAC-5090H で計算を行なった。モンテカルロ計算のケース数としては 10,000～200,000 をとった。モンテカルロ法の結果をメッシュ法の結果と比べたものを表 3-3、図 3-16 および図 3-17 に示す。これらの図表から次のようなことが判明する：(1) 中性子エネルギーと

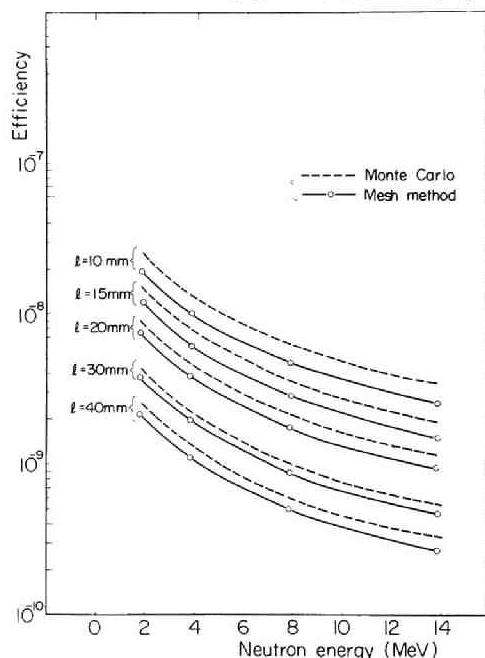


図 3-17 モンテカルロ法およびメッシュ法によって計算した ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率のエネルギーに対する依存性

効率の関係は、両者とも形状はほぼ等しいが、モンテカルロ法によって求めた値の方がメッシュ法によるものよりやや大きい。(2) シリコン検出器の間隔が大きいときにはモンテカルロ法とメッシュ法の結果は合致する(これらの表や図に示した値よりさらに大きなシリコン検出器間隔をとると両者は完全に一致した)。一方、これを小さくするほどモンテカルロ法による結果がメッシュ法による結果より大きくなって来る。したがって、シリコン検出器間隔がある程度以上小さくなるとモンテカルロ法を使うのがよい。しかし、

本研究では通常この間隔を 2 cm 程度の値にとっているので、効率の絶対値はモンテカルロ法で求めた値がメッシュ法の結果より少し大きい、その形状はほぼ同様なものでいずれの方法で計算した効率を用いても、高速中性子スペクトル測定上あまり大きくかわることはない。さらにこの間隔が大きくなると、モンテカルロ法による計算時間がメッシュ法より遙かに長くかかるので、むしろメッシュ法を使うべきである。

2.3 分解能の計算

高速中性子スペクトルを測定する場合、いかなるエネルギー分解能が得られるかということは極めて重要なことである。 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタを使用した場合の

エネルギー分解能は主として次のような因子によって支配される：（１） ${}^6\text{LiF}$ 付コロジオン膜中におけるトリトンおよび α 粒子のエネルギー損失の広がり、（２）シリコン検出器の熱雑音および γ 線によるパルスの中性子信号への重なり、（３）電子回路の雑音。このうち、通常は、（１）によるものが最も大きいために ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのエネルギー分解能は殆んどこれによって決る。そこで、この値を理論的に求めた。

${}^6\text{LiF}$ 膜中の点 (x_0, y_0, z) なる点を中心とした微小体積内で ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応が起った場合の ${}^6\text{LiF}$ 付コロジオン膜中におけるトリトンおよび α 粒子のエネルギー損失を計算する。このカウンタ全体はコロジオン膜のために左右対称でないことに注意すれば、図 3-18

に示すように、次の 2つの場合がある：（１）トリトンがこのコロジオン膜を横切り α 粒子が横切らない、

（２） α 粒子がこのコロジオン膜を横切りトリトンが横切らない。それぞれの場合について、トリトンのエネルギー損失 ΔE_t および α

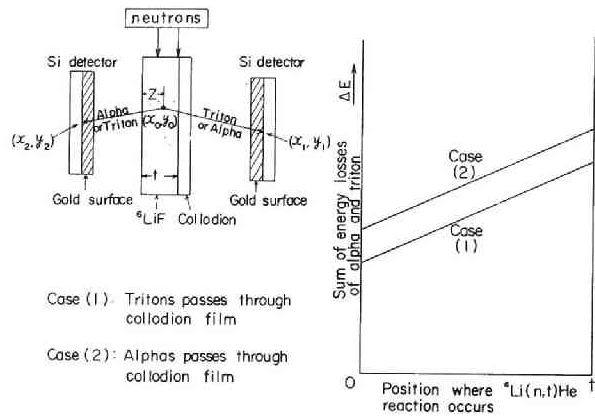


図 3-18 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのエネルギー分解能を計算するための模式図と 2つの場合（本文参照）における生成粒子のエネルギー損失

粒子のエネルギー損失 ΔE_α は次のようになる：

（１）の場合：

$$\Delta E_{t1} = \frac{t-z}{\sin \phi} \left(\frac{dE_t}{dz} \right) {}^6\text{LiF} + \frac{t'}{\sin \phi} \left(\frac{dE_t}{dz} \right)_{\text{coll}} + \frac{tg}{\sin \phi} \left(\frac{dE_t}{dz} \right)_{\text{Au}} \quad (3.16)$$

$$\Delta E_{\alpha 1} = \frac{z}{\sin \phi'} \left(\frac{dE_\alpha}{dz} \right) {}^6\text{LiF} + \frac{tg}{\sin \phi'} \left(\frac{dE_\alpha}{dz} \right)_{\text{Au}} \quad (3.17)$$

（２）の場合：

$$\Delta E_{t2} = \frac{t-z}{\sin \phi} \left(\frac{dE_t}{dz} \right) {}^6\text{LiF} + \frac{tg}{\sin \phi} \left(\frac{dE_t}{dz} \right)_{\text{Au}} \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned} \Delta E_{\alpha 2} = & \frac{z}{\sin \phi'} \left(\frac{dE_{\alpha}}{dz} \right)_{\text{LiF}} + \frac{t'}{\sin \phi'} \left(\frac{dE_{\alpha}}{dz} \right)_{\text{coll}} \\ & + \frac{tg}{\sin \phi'} \left(\frac{dE_{\alpha}}{dz} \right)_{\text{Au}} \quad . \end{aligned} \quad (3.19)$$

ただし、ここで、

$\left(\frac{dE_t}{dz} \right)_{\text{LiF}}, \left(\frac{dE_t}{dz} \right)_{\text{coll}}, \left(\frac{dE_t}{dz} \right)_{\text{Au}}$: トリトンの⁶LiF、コロジオン、
金の中におけるエネルギー損失率、

$\left(\frac{dE_{\alpha}}{dz} \right)_{\text{LiF}}, \left(\frac{dE_{\alpha}}{dz} \right)_{\text{coll}}, \left(\frac{dE_{\alpha}}{dz} \right)_{\text{Au}}$: α 粒子の⁶LiF、コロジ

オン、金の中におけるエネルギー損失率、

t : ⁶LiF 膜の厚さ、

t' : コロジオン膜の厚さ、

tg : シリコン検出器表面の金の厚さ、

ϕ : トリトンとシリコン検出器のなす角、

ϕ' : α 粒子とシリコン検出器のなす角。

(1) および (2) の場合について、トリトンと α 粒子のエネルギー損失の和、 $\Delta E = \Delta E_{t1} + \Delta E_{\alpha 1}$ および $\Delta E = \Delta E_{t2} + \Delta E_{\alpha 2}$ を⁶LiF 膜内の位置 z の関数として求めると、図3-18の右の図のような2本の直線となることが分る。このエネルギー損失の和、 ΔE がカウンタ全体としていかに分布するかを求める。この計算に当っては、前述の中性子検出効率を求めた場合と同様に、トリトンと α 粒子が2つのシリコン検出器に入る割合を重率として考える。

上述のようにして求めた⁶Li サンドイッチカウンタのエネルギー損失の和、 ΔE 分布曲線の例を図3-19に示す。この ΔE 分布曲線の広がりエネルギー分解能に対応する。そこで、この ΔE 分布曲線の広がりとしてその半値巾 $\Delta E_{1/2}$ を求めた。次に、この ΔE 分布曲線の平均値 $\overline{\Delta E}$ を求めた。これはトリトンと α 粒子の平均エネルギー損失である。エネルギー E の中性子に対する⁶Li サンドイッチカウンタの出力パルス波高の平均値が $E + Q - \overline{\Delta E}$ となることからして、平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ は

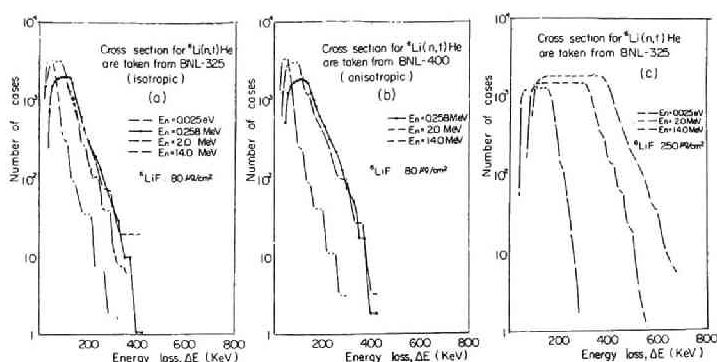


図 3-19 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタにおける ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ 反応生成粒子 ($\alpha + t$) のエネルギー損失の分布
(a) 図 3-3 に示したカウンタで BNL-325 使用
(b) 同じカウンタについて BNL-400 使用
(c) 図 3-4 に示したカウンタで BNL-325 使用

パルス波高と中性子エネルギーの関係を出すのに用いられる。

${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ 反応断面積として、
(1) BNL-325 を用い、トリトンが重心系で等方的に放出されるとし

た場合、(2) トリトンに関する非等方性のデータを BNL-400 から採用した場合について、トリトンと α 粒子の平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ とエネルギー分解能 $\Delta E_{1/2}$ の

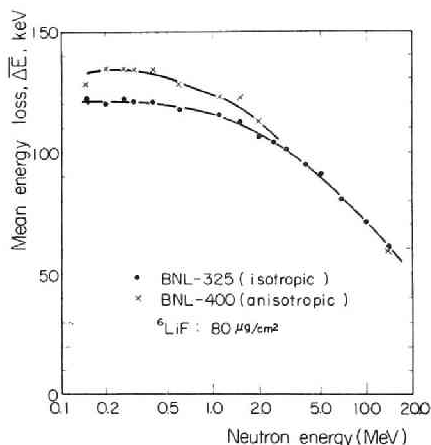


図 3-20 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタにおける ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ 反応生成粒子の平均損失エネルギー (図 3-3 のカウンタ)

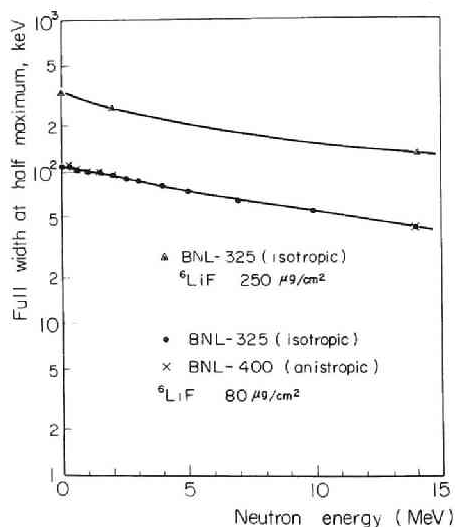


図 3-21 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタにおける ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ 反応生成粒子のエネルギー損失分布の半値巾

値を計算した結果を図 3-20 および図 3-21 に示す。これらの図からみて、エネルギー分解能 $\Delta E_{1/2}$ は (1) と (2) で殆んど差がない。これに対し、平均エネルギー損失は、中性子エネルギーが 2 MeV 以下において (2) によって求めた値の方が (1) の値より少し大きい。この理由はまだよく分らない。また、同じ図から、図 3-4

および図3-5に示した代表的なカウンタの場合、2 MeV の中性子に対するエネルギー分解能 $\Delta E_{1/2}$ は、 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の単位であらわした ^6LiF 膜厚の数字に keV をつけた値にほぼ等しくなることが分る。

2. 4 ^6Li サンドイッチカウンタの特性試験

(1) 熱中性子に対する応答

図3-3に示した ^6Li サンドイッチカウンタの熱中性子に対する応答をしらべた。中性子源として2 Ci の $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ をパラフィンで囲んだものを使用した。図3-22はこの場合のパルス波高分布とその波高分布上における α 粒子、トリトンおよび両者の和のピークチャンネルとそれらのエネルギーの関係を示したものである。ここで使用した ^6LiF 膜の厚さは約 $150\mu\text{g}/\text{cm}^2$ で和ピークの半値巾は約 240keV となり、ほぼ計算値(図3-21参照、ただし、この図には ^6LiF 膜厚 $80\mu\text{g}/\text{cm}^2$ と $250\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する値がでているので、それから内挿した)に等しく、Love and Murray の値⁹⁾、 300keV より少し良い。また、図3-22からみて、 α 粒子、トリトンおよび和パルスのエネルギーとピークチャンネル間の直線性は良好である。

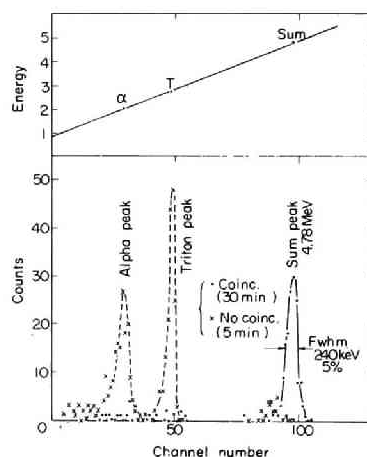


図3-22 ^6Li サンドイッチカウンタの熱中性子に対する応答
—— パルス波高分布と各々のピークとエネルギーの関係 ——

(2) 原子炉出力による分解能の変化

原子炉の高速中性子スペクトルは原子炉の出力によって変化しないが、出力が増すにつれて γ 線量率が上るため ^6Li サンドイッチカウンタのエネルギー分解能が変化することがある。このことは、高速中性子測定位置やしゃへいの条件などで変化する。そこで、原子炉の高速中性子を実際に測定するに先立って、こうした γ 線の影響などをあらかじめ求めておくことが必要である。

図3-3に示した ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタをしゃへいがや、不十分な状態で使用した場合の原子炉出力と熱中性子ピークの間隔を図3-23および表3-4に示す。出力が10 kW から 1,000 kW まで増加するにつれ、熱中性子ピークの間隔はどん

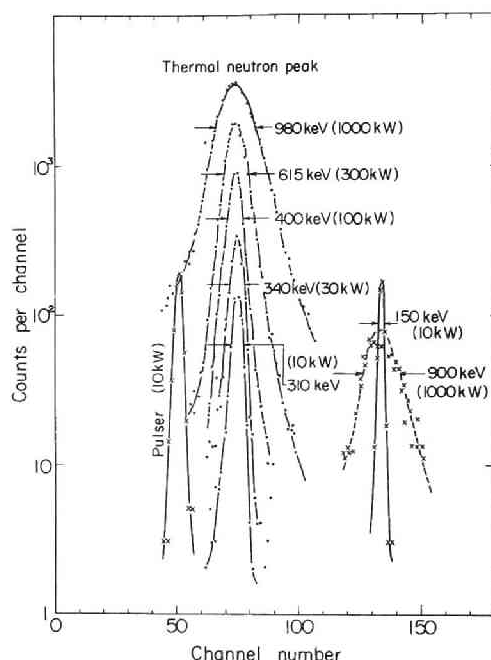


表3-4 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのエネルギー分解能と原子炉出力との関係 (熱中性子ピークとパルサーピーク)

原子炉出力 (kW)	熱中性子 ピーク巾 (keV)	パルサー ピーク巾 (keV)
10	310	150
30	340	180
100	400	250
300	615	400
1,000	900	900

図3-23 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの分解能と原子炉出力との関係 (パルサーピークと熱中性子ピーク)——シリコン検出器のしゃへいが不十分な場合——

どん広がった。これは炉心からの強烈な γ 線がシリコン検出器に入射して生じたパイルアップによるものと考えられる。

カウンタ周辺のしゃへいを増強し、いわゆる shielded diode 型にすることによって、エネルギー分解能は向上し低出力の場合の結果に近ずいた。

(3) バックグラウンド

${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのバックグラウンドは主として次のような要因による：(1) シリコン検出器の ${}^{28}\text{Si} (n, p) {}^{28}\text{Al}$, ${}^{28}\text{Si} (n, \alpha) {}^{25}\text{Mg}$, ${}^{29}\text{Si} (n, \alpha) {}^{26}\text{Mg}$ などの反応、(2) コロジオン膜からの反跳陽子、(3) ${}^6\text{Li} (n, t) {}^4\text{He}$

反応で生成したトリトンや α 粒子と γ 線との偽の同時計数。このうち、 $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ 反応のバックグラウンドが最も大きいといわれている¹⁸⁾³⁴⁾。

こうしたバックグラウンドの評価のために、 ^6LiF 膜を ^7LiF 膜に置換する方法が提案されている¹⁰⁾。これによって、上記の3つの要因によるバックグラウンドが求められる。しかしながら、この場合 ^7Li の反応、例えば $^7\text{Li}(n, n't)^4\text{He}$ 反応などによる影響があれば問題である。このためにここでは次の3つの場合についてパルス波高分布を比較した：(1) ^7LiF 付きコロジオン膜、(2) コロジオン膜、(3) 膜なし。図3-24は(1)の場合と(2)の場合を比較したものである。これらの場合とさらに(3)の場合の全計数率を比較すると次のようになる：

(1) ^7LiF 付きコロジオン膜：

134 (counts / 時間)

(2) コロジオン膜：

129 (counts / 時間)

(3) 膜なし：

104 (counts / 時間)

この結果からみると、(1)と(2)は誤差の範囲で一致しているといえるのに対し、膜なしの場合は明らかに少し低い計数率である。

一方、2つのシリコン検出器出力の同時計数を外して単に和パルスのみを計数すると 図3-25のようになった。ここでは上記の3者はほぼ一致している。以上の結果からして、 ^6Li サンドイッチカウンタのバックグラウンドは ^6LiF 付きコロジオン膜を ^7LiF 付きコロジオン膜あるいはコロジオン膜に置換する方法で測定するのが良いといえる。

最後に、実際に原子炉の実験孔において高速中性子スペクトル測定を行なった場

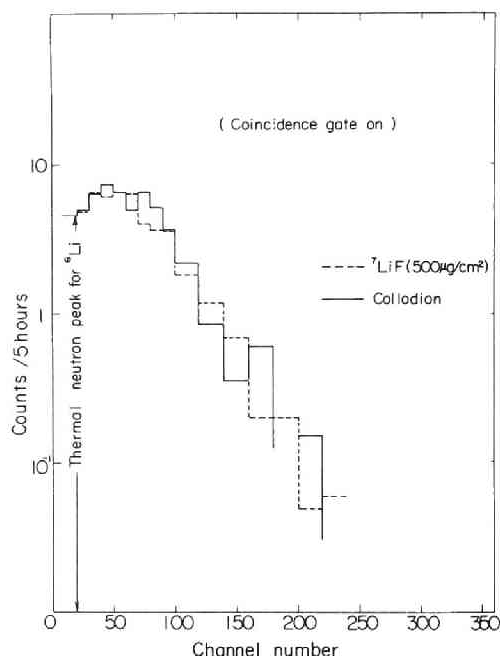


図3-24 ^6Li サンドイッチカウンタのバックグラウンドの検討 (1) (^7LiF 膜にした場合とコロジオン膜にした場合の比較、いずれも同時計数測定)

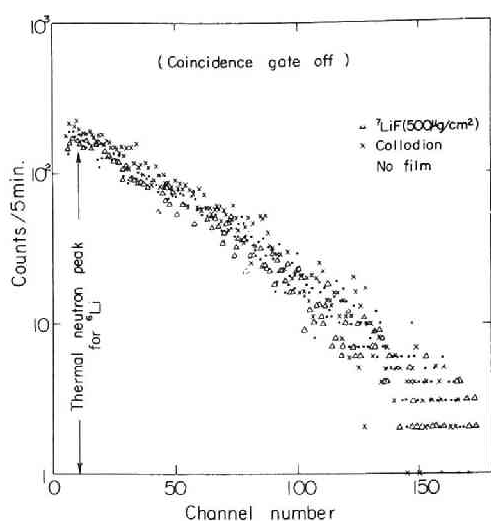


図 3-25 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのバックグラウンドの検討 (2) (${}^7\text{LiF}$ 膜、コロジオン膜および膜なしの場合の比較、いずれも同時計数なしの測定)

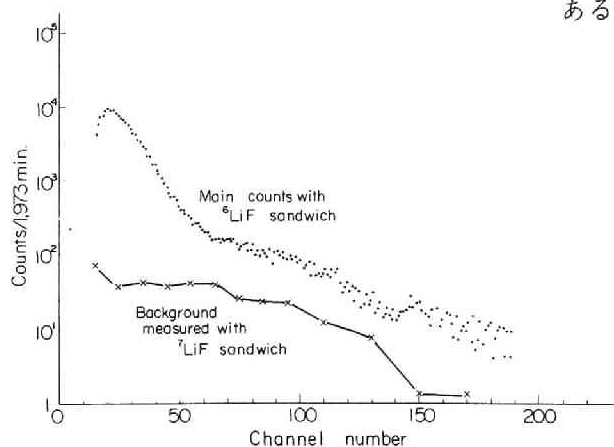


図 3-26 KUR の E-3 実験孔における ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのパルス波高分布と ${}^7\text{Li}$ バックグラウンドカウンタの比較

合のバックグラウンド計数を ${}^6\text{LiF}$ 付きコロジオン膜の場合の計数と比較した結果を図 3-26 に示す。この図からみると、高速中性子領域におけるバックグラウンドは 10~20% であることが分る。なかでも中性子エネルギーが 2 MeV~4 MeV の間 (図では約 60 チャンネル~130 チャンネル) において、バックグラウンドの割合が大きい。このことは Rydin の指摘しているように³⁴⁾、 ${}^{28}\text{Si}(n, p){}^{28}\text{Al}$ 反応の寄与が大きいためであると説明できる。なお、この測定

においては厚さ $120\mu\text{g}/\text{cm}^2$ という比較的薄い ${}^6\text{LiF}$ 膜を使用しているが、この膜厚を大きくすると中性子計数値に対するバックグラウンドの割合は減少するはずである。また、シリコン検出器のしゃへいをさらに増加しても、バックグラウンドの割合は減ることが予測で

きる。

(4) エネルギー分解能の計算値と実験値の比較

${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのエネルギー分解能の計算と実験とを比較する。比較を容易にするためとくに厚い ${}^6\text{LiF}$ 膜 (厚さ $850\mu\text{g}/\text{cm}^2$) の場合について検討した。

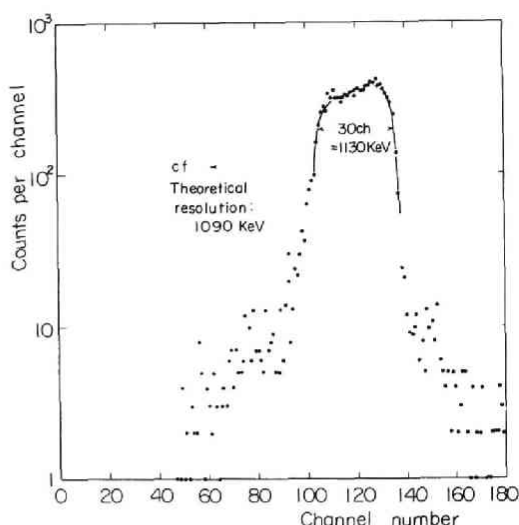


図3-27 厚膜 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタによる熱中性子ピーク
—— 半値巾について実験値と計算値の比較 ——

実験はKURの実験孔(E-3)の出口に厚さ5cmの鉛を置いて γ 線のパイルアップを防ぎながら行なった。図3-27はこうして求めた熱中性子ピークを示している。これから半値巾を求めると1,130keVとなった。一方、計算による分解能は1,090keVとなり両者はほぼ一致した。これによって、エネルギー分解能の計算法に問題がないことが分る。

(5) 単色の高速中性子によるテスト

${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタを用いて実際の高速中性子スペクトル測定を行なうに先立ち、単色の高速中性子によるテストをしておくことが望ましい。これは、(1) 中性子検出効率、分解能等の実験的較正、(2) 中性子エネルギーと出力パルス波高間の直線性の確認のためといえる。しかしながらここでは中性子源の強度の制約から(1)は殆んど行えず、主として(2)について測定した。

日本原子力研究所(原研)の2MeVバンデグラフ加速器および大阪府立放射線中央研究所(大放研)の1MeVバンデグラフを使用して単色の高速中性子を発生し、これによって ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの応答を測定した。大放研のバンデグラフによって、重陽子を0.9MeVに加速し、重水素ターゲットにあてた場合の結果を図3-28に示す。重陽子ビーム電流は約30 μA であった。前方方向(測定位置)における中性子のエネルギーは約4MeVである。この図には ${}^6\text{LiF}$ 付きコロジオン膜を外し ${}^3\text{He}$ ガスを充填して ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタとした場合の応答も掲げてある。図3-29は、図3-28にあらわれた ${}^3\text{He}$ の熱中性子ピーク(0.77MeV)、 ${}^3\text{He}$ の高速中性子ピーク(4.77MeV)、 ${}^6\text{Li}$ の熱中性子ピーク(4.78MeV)および ${}^6\text{Li}$ の高速中性子ピーク(8.78MeV)に関するエネルギーとピークチャンネル数の関係を

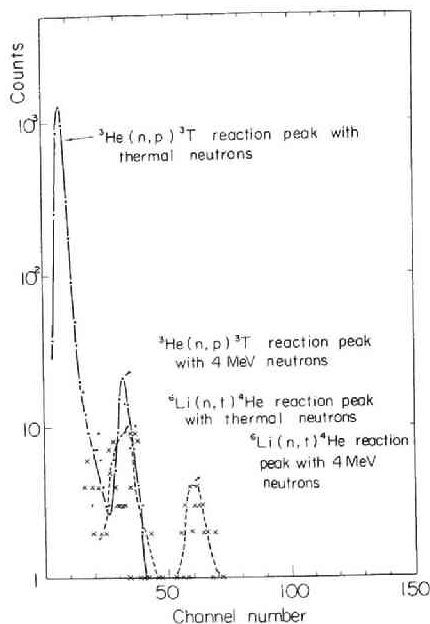


図 3-28 ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの 4 MeV の中性子に対する応答

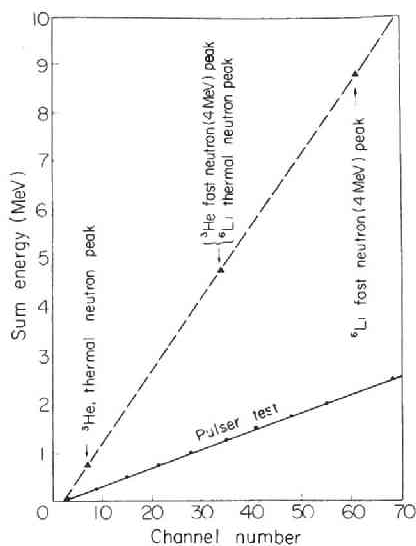


図 3-29 4 MeV の中性子に対する ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタのエネルギーとパルス波高の関係

示している。両者の直線性は良好であることが分る。したがって、少なくとも 4 MeV 以下の高速中性子に関してはエネルギーと出力パルス間の直線性は十分である。前述のように使用したシリコン検出器は空乏層が最大 $300\ \mu$ のものなので、測定可能な中性子エネルギーの上限は約 12.7 MeV となるはずである。

第 3 節 ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタ

3.1 ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの試作

前述のように、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 反応は ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ 反応より断面積が大きく、また ${}^3\text{He}$ ガス中における陽子やトリトンのエネルギー損失率は ${}^6\text{LiF}$ 付きコロジオン膜中におけるトリトンや α 粒子のエネルギー損失率より小さいので、 ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタは ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタよりも中性子検出効率が大きくエネルギー分解能が良好となると考えられる。しかし、反応の Q 値が、 ${}^6\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$ 反応の場合 4.78 MeV であるのに対し、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ 反応では僅か 0.77 MeV しかないことが ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの特性に大きな影響を与える。ここでは、

^3He サンドイッチカウンタを試作して、その特性を理論的および実験的に検討した。

カウンタヘッドとしては、 ^6Li サンドイッチカウンタと共用とし、図 3-4 および図 3-5 に示したものを使用した。 ^3He サンドイッチカウンタとして使用するさいには、 ^6LiF 付きコロジオン膜を外したのち容器内に ^3He ガスを充填した。 ^3He ガスは米国ORTEC社製のものを使用した。これはトリチウム濃度の低いものである。

測定回路はすべて ^6Li サンドイッチカウンタの場合と同じである。

3.2 検出効率と分解能

^3He サンドイッチカウンタの中性子検出効率と分解能に関し、 ^6Li カウンタの場合と同様にして計算を行なった。 ^6Li カウンタの効率の計算では、 ^6LiF 膜の厚さは無限に薄いと見なしたが、 ^3He カウンタでは ^3He ガスの部分は有限の厚さを有しているとしてこれを 3次元のメッシュに分割した。一方、シリコン検出器の方は ^6Li カウンタの場合と同様に 2次元メッシュに分割した。いま、 ^3He ガス中の 1点 (x_0, y_0, z_0) を中心とした微小体積をとり、この中で $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応が起った場合、右側のシリコン検出器有感部上の点 (x_1, y_1, A) を中心とする微小部分へこの反応で生成した陽子が入射し、かつ左側のシリコン検出器へ同じ反応でできたトリトンが入射する確率を考える。この場合、 ^6Li カウンタの場合の式 (3.5)、(3.6)、(3.7) および (3.8) に対応する式としては、

$$\theta_L = \tan^{-1} \left\{ \frac{\sqrt{(y_0 - y_1)^2 + (A - z_0)^2}}{x_0 - x_1} \right\}, \quad (3.20)$$

$$\begin{aligned} \theta_{CM} = \tan^{-1} \left\{ \frac{1}{\sqrt{\frac{m_2 m_4 (E + Q)}{m_1 m_3 E} \{ (x_0 - x_1)^2 + (y_0 - y_1)^2 + (A - z_0)^2 \}}} \right\} \\ + \theta_L \end{aligned} \quad (3.21)$$

$$\theta'_{CM} = \pi - \theta_{CM}, \quad (3.22)$$

$$\theta'_L = \tan^{-1} \left\{ \frac{\sin \theta'_{CM}}{\cos \theta'_{CM} + \sqrt{\frac{m_1 m_3 E}{m_2 m_4 (E + Q)}}} \right\}. \quad (3.23)$$

ただし、ここで

m_2 : ^3He の質量,

m_3 : 陽子の質量,

m_4 : トリトンの質量,

Q : この反応の Q 値, 0.77MeV .

さらに、(3. 9)、(3. 10) 式に対応して、反跳トリトンが左側のシリコン検出器面を切断する点の x , y 座標は、

$$x_2 = \begin{cases} x_0 - \sqrt{\frac{\cos^2 \theta'_L \{ (y_0 - y_1)^2 + (A - z_0)^2 \}}{1 - \cos^2 \theta'_L}} \\ \text{for } \theta'_L \leq \pi/2 \end{cases} \quad (3.24. a)$$

$$\begin{cases} x_0 + \sqrt{\frac{\cos^2 \theta'_L \{ (y_0 - y_1)^2 - (A - z_0)^2 \}}{1 - \cos^2 \theta'_L}} \\ \text{for } \theta'_L \geq \pi/2 \end{cases} \quad (3.24. b)$$

$$y_2 = 2y_0 - y_1, \quad (3.25)$$

トリトンが左側のシリコン検出器において検出される条件は、 ^6Li カウンタの場合と同様にして、

$$x_2^2 + y_2^2 < R^2, \quad (3.26)$$

結局、この場合の中性子検出効率は (3. 13) と同様にして、次の積算を行なうことによって求められる：

$$\eta(E) = 2 N_{\text{He}} \sum_{\substack{{}^3\text{He ガス, シリコン検出器} \\ x_2^2 + y_2^2 < R^2}} p(E, \theta_L) \cdot \Delta\Omega \Delta x_1 \Delta y_1 \Delta x_0 \Delta y_0 \Delta z_0, \quad (3.27)$$

ここで、

N_{He} : ^3He ガス中の ^3He 原子数密度、

$\Delta x_0 \Delta y_0 \Delta z_0$: ^3He ガス中の点 (x_0, y_0, z_0) を中心にとる微小体積.

$^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応については角度依存微分断面積の実験結果がないので、BNL-325 (Second edition) のエネルギー依存断面積を用い、陽子の放出は等方として効率を計算した。その結果を図3-30に示す。この結果からみて、 ^3He ガス圧が 0.5

kg/cm^2 の ^3He サンドイッチカウンタは厚さ $500\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の ^6LiF 膜を用いた ^6Li サンドイッチカウンタの約10倍の効率を有することが分る。

次に、 ^3He サンドイッチカウンタのエネルギー分解能を計算した。この場合の手順は殆んどすべて ^6Li サンドイッチカウンタの場合と同一でよいが、 ^6Li カウンタではコロジオン膜の存在のために、左右対称性が失な

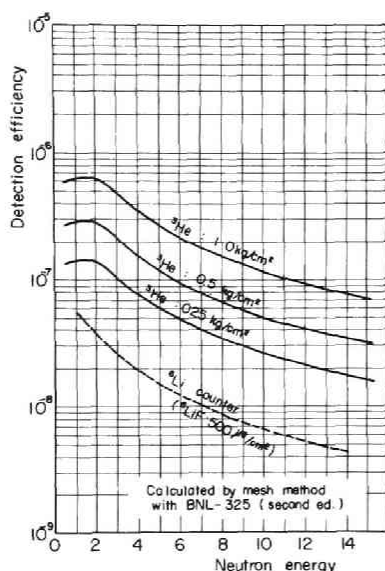


図3-30 ^3He サンドイッチカウンタの中性子検出効率計算値 (図3-4に示したカウンタの場合)

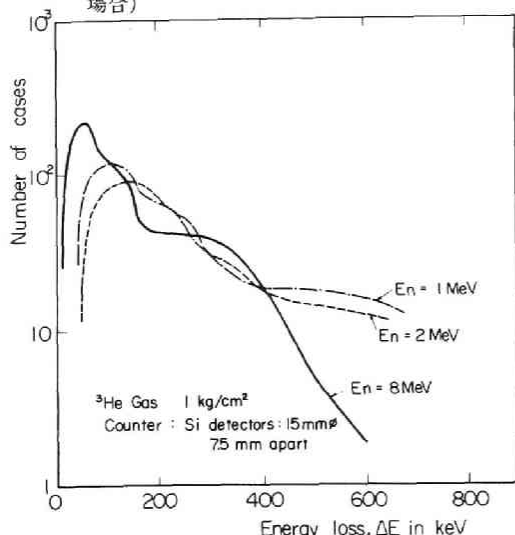


図3-31 ^3He サンドイッチカウンタにおける $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応生成粒子 $(p+t)$ のエネルギー損失の分布

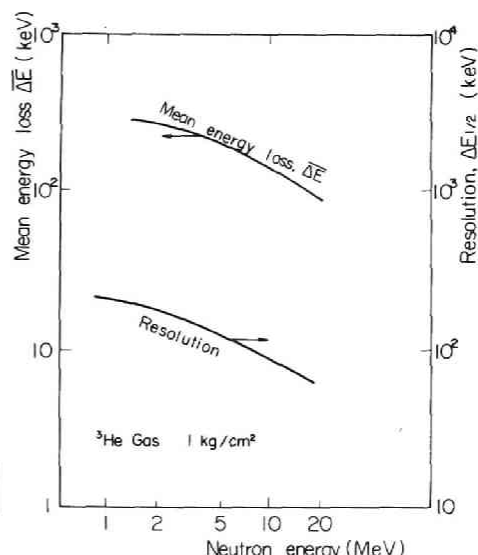


図3-32 ^3He サンドイッチカウンタにおける $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応生成粒子 $(p+t)$ 平均エネルギー損失とその分布の半値巾

われたのに対し、 ^3He カウンタでは左右全く対称である。このようにして求めた $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応生成粒子のエネルギー損失 ΔE の分布を図 3-31 に示す、また、平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ とエネルギー損失分布の半値巾 $\Delta E_{1/2}$ を図 3-32 に示す。この図からみて、ここで考えた ^3He サンドイッチカウンタのエネルギー分解能は 100~200 keV であることが分る。

3. 3 ^3He サンドイッチカウンタの特性試験

(1) 熱中性子に対する応答

図 3-4 に示したカウンタヘッドに ^3He ガスを圧力 0.25 kg/cm² まで入れた場合の熱中性子に対する応答をしらべた。中性子源として $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ をパラフィンで囲んだものを使用した。図 3-33 はこの場合のパルス波高分布とその波高分布上におけるトリトン、

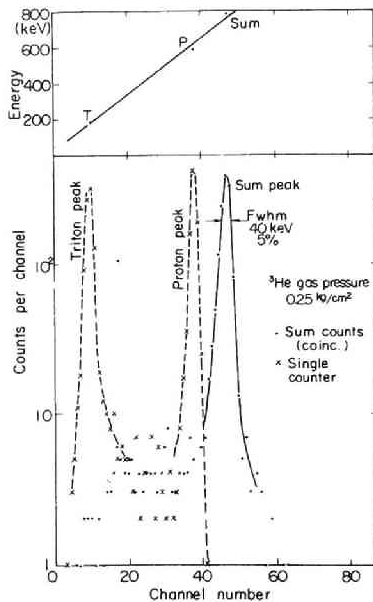


図 3-33 ^3He サンドイッチカウンタの熱中性子に対する応答

陽子および両者の和のピークチャンネルとそれらのエネルギーの関係を示したものである。この図から分ることは (1) 和ピークの半値巾が 40keV と非常に狭く、 ^6Li サンドイッチカウンタの場合より遙かに良好なエネルギー分解能である、(2) トリトン、陽子および和ピークのチャンネル数とエネルギーの間の直線性は良好である。

(2) バックグラウンドおよび γ 線パイルアップ

^3He サンドイッチカウンタのバックグラウンドは、 ^3He ガスをぬいて真空にした場合について測定を行なった。その結果は図 3-34 のように ^3He ガスが入っている場合の計数に比べ遙かに小さい。この方法では $^3\text{He}(n, d)^2\text{H}$ 反応によるバックグラウンドなどは除去できないが、この

反応の断面積は 5 MeV において $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 反応の $1/10$ 程度であり、エネルギーが下ると急激に減るためあまり問題にならないと思われる。しかし、次に述べるように γ 線のパイルアップがあるとバックグラウンドは増加する。

γ 線パイルアップの影響をしらべるため KUR の E-3 実験孔に ^3He サンドイッチカウンタを置き、実験孔の出口とカウンタの間に厚さ 10 cm および 5 cm の鉛を置いた場合と置かない場合の波高分布

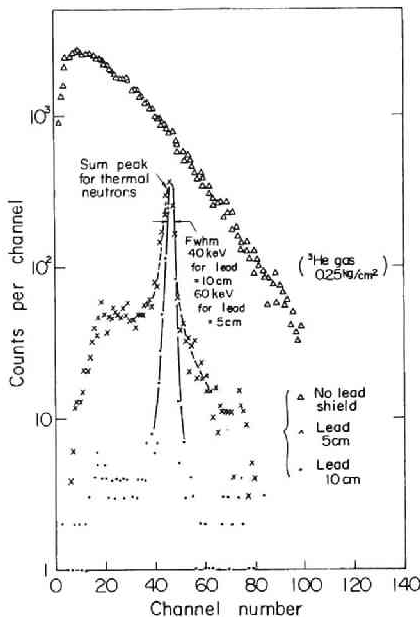


図 3-35 ^3He サンドイッチカウンタの熱中性子ピークに対する γ 線パイルアップの影響 (KUR 実験孔 E-3 で鉛板の厚さを変化させて測定)

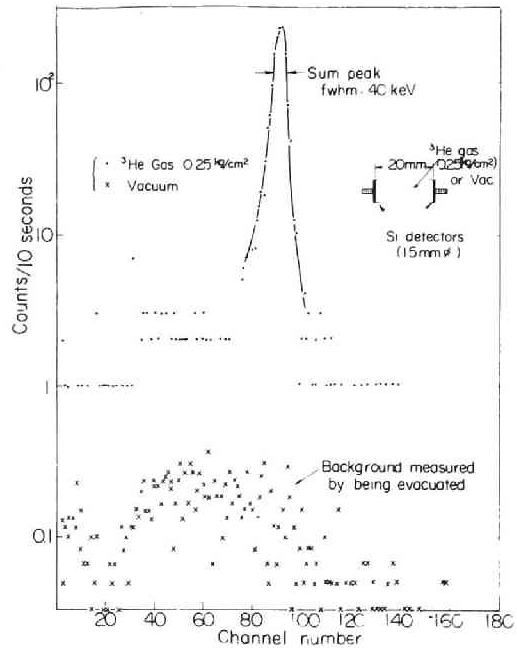


図 3-34 ^3He サンドイッチカウンタ、熱中性子ピークとバックグラウンドの比較

を比較した。その結果を図 3-35 に示す。いわゆる shielded diode 型 ^3He サンドイッチカウンタであるにもかかわらず γ 線パイルアップの影響は著しく鉛を置かない場合には熱中性子ピークは全く認められなくなる。このように、 ^3He サンドイッチカウンタに対する γ 線パイルアップの影響が ^6Li カウンタの場合より遙かに著しいことは ^3He カウンタの使用範囲を制限することになる。

(3) ^3He ガス圧と効率の関係

^3He ガスの圧力を変化させた場合、出力パルス波高分布がいかに変化するかについて観測した。その結果を図 3-36 および

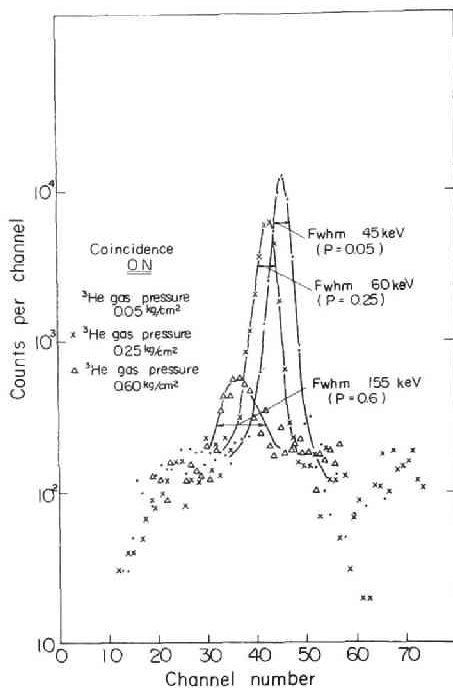


図 3-36 ^3He サンドイッチカウンタの熱中性子ピークと ^3He ガス圧の関係 (1)
——同時計数——

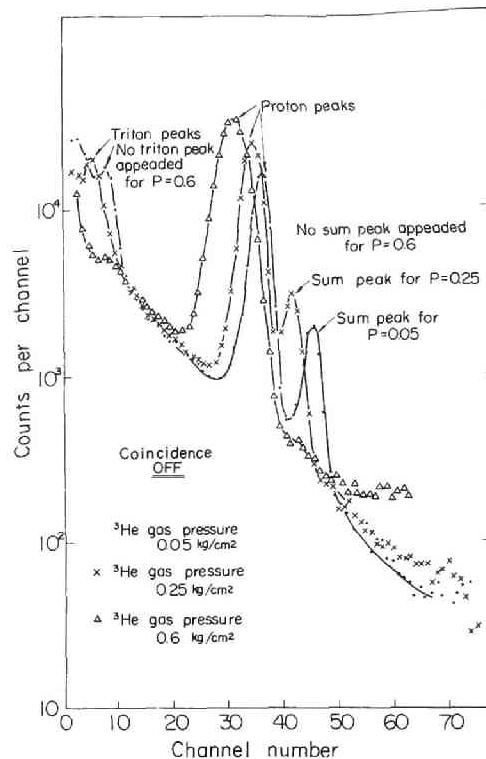


図 3-37 ^3He サンドイッチカウンタの熱中性子ピーク、陽子ピークおよびトリトンピークと ^3He ガス圧の関係 (2)
——同時計数なし——

図 3-37 に示す。ただし、前者は同時計数をとった場合であるのに対し、後者はとらなかった場合を示している。図 3-36 の熱中性子ピークをみると、 ^3He ガスの圧力を上げるにつれてカウント数が減少していることが注目される。この現象は、図 3-37 によって説明できる。すなわち ^3He ガス圧を増加するにつれて、トリトンのピークのパルス波高が減少し、ガス圧が 0.6 kg/cm^2 の場合には殆んどトリトンピークが見えなくなってしまっている。このことは、約 195 keV という低いエネルギーのトリトンが、 0.6 kg/cm^2 の ^3He ガス中を通過する間にエネルギーを損失してシリコン検出器に殆んどとりつけないためと考えられる。こうしたことは、低いエネルギーの中性子を測定するさい大きな問題であり注意を要する。

高速中性子の測定の場合は、生成するトリトンのエネルギーが大きくなり上記のことはあまり問題でなくなる。これを確かめるため前述の大放研のバンデグラフで 4

MeV の単色中性子を用い ^3He ガス圧と計数率の関係を測定した。その結果を図3-38に示す。このような高速中性子では ^3He ガスの圧力と計数率はほぼ比例している。

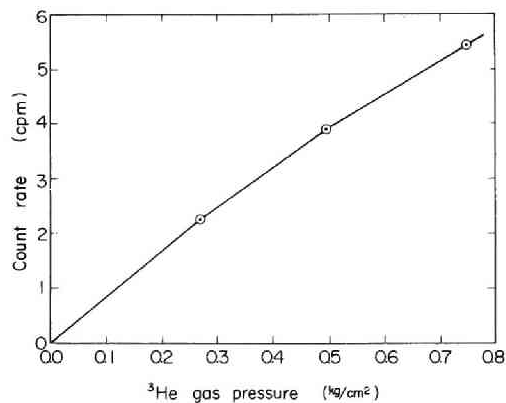


図3-38 ^3He サンドイッチカウンタの ^3He ガス圧と計数率（効率）との関係、ただし、これは4 MeV の高速中性子に対するものである

(4) 単色の高速中性子によるテスト

すでに前節2. 4の ^6Li カウンタの特性試験および前項でも

^3He サンドイッチカウンタの4 MeV の中性子に対する応答について若干述べたが、さらに原研の2 MeV バンドグラフによって単色中性子を発生し ^3He サンドイッチカウンタの単色中性子に対する応答を測定した。まず $T(p, n)^3\text{He}$ 反応によって得た

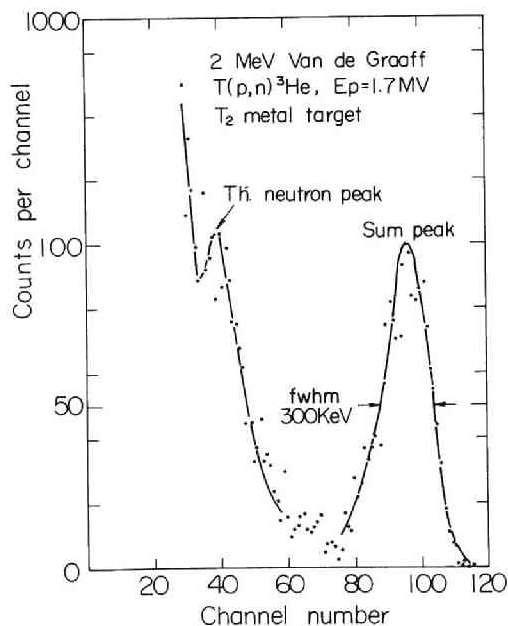


図3-39 ^3He サンドイッチカウンタの890 keV 中性子に対する応答

890 keV の中性子に対する応答を図3-39に示す。この場合、高速中性子のエネルギーの拡がりは約300 keVもあるが、これはトリチウムターゲットとしてメタルターゲットを使用したために拡がったものである。さらに中性子のエネルギーを変化させて同様の測定を行ない、パルス波高分布のピークチャンネルとエネルギーの関係プロットすると図3-40のようになり、両者の間の直線性は良好である。同様の関係は $D(d, n)^3\text{He}$ 反応による単色中性子についても測定された。その結果を図3-41に示

す。この場合も両者の直線性は良好である。

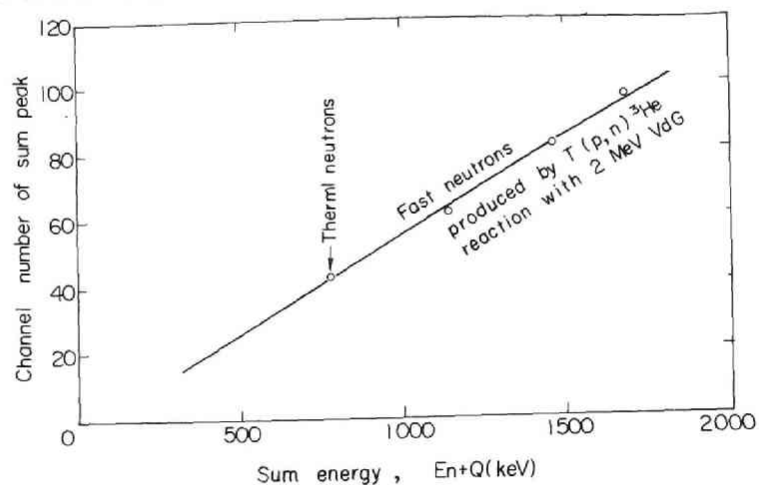


図 3-40 ^3He サンドイッチカウンタの高速中性子ピークのチャンネル数とエネルギーの関係 (1) — $\text{T}(p, n)^3\text{He}$ 中性子 —

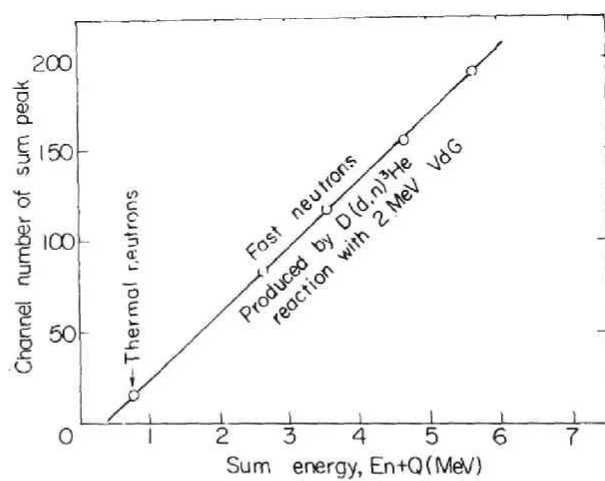
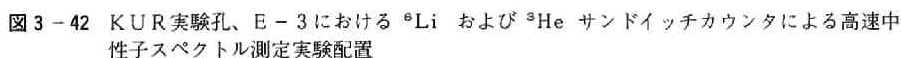


図 3-41 ^3He サンドイッチカウンタの高速中性子ピークのチャンネル数とエネルギーの関係 (2) — $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ 中性子 —

クトル測定への応用

実験の配置を図3-42に示す。ここで、炉心配置（1）および（2）という2つの配置は、前者はE-3実験孔が反射体の黒鉛層を通して炉心燃料部を見る配置に



— 67 —

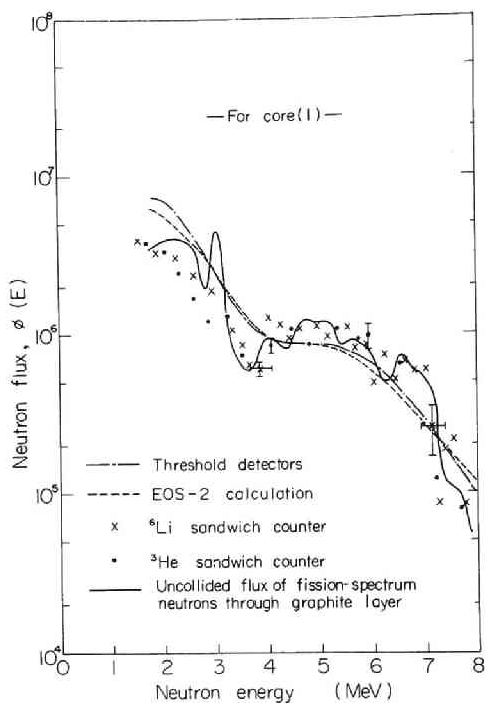


図3-43 KUR、E-3 孔 流出高速中性子スペクトル (1)
—— 炉心配置 (1) の場合 ——

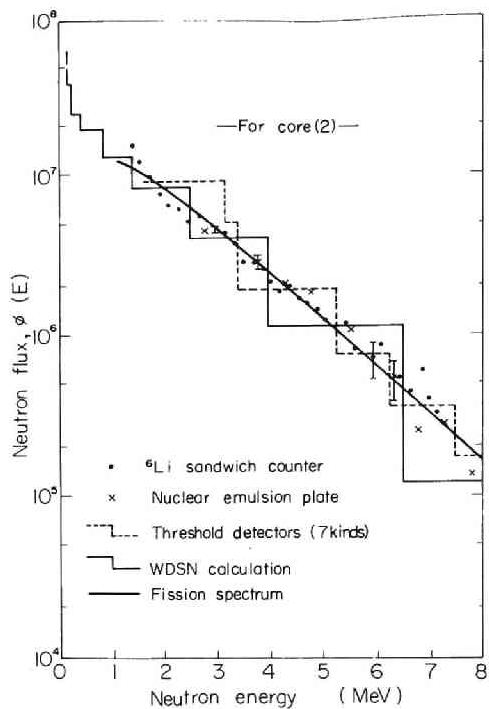


図3-44 KUR、E-3 孔 流出高速中性子スペクトル (2)
—— 炉心配置 (2) の場合 ——

測定結果を図3-43および図3-44に示す。ただし、図3-43は第Ⅱ章の図2-22にほぼ同じものである。いずれもサンドイッチカウンタによる測定結果の他、しきい検出器や原子核乾板による測定結果や計算結果も併せ示している。まず、炉心配置 (1) の場合は黒鉛層透過スペクトルらしい山や谷がしきい検出器による測定結果よりもはっきりと現われている。一方、炉心配置 (2) の場合は核分裂スペクトルに近いことが分る。

ここで示した原子核乾板の結果³⁵⁾はフジET-2E、ET-6Bを用い、原子核乾板用顕微鏡で測定した反跳陽子飛跡のデータを電子計算機によって処理したものである。

また、ここに示した計算値は、中性子輸送方程式を解く S_n コード、WDSN³⁶⁾に Abagyan の組定数³⁷⁾を入れて求めたものである。この場合、円筒型原子炉を仮定し、半径方向に40メッシュをとった。Abagyan の定数のエネルギー群分けは非常に粗

いが、高速中性子スペクトルの概形を知ることが可能である。

前章に引きつづいて、KURの炉心内燃料部においてはほぼ核分裂中性子スペクトルに近い中性子場になっていることが確認できた。このことを利用して、しきい反応平均断面積の測定ができる。これについては第V章に述べる。

4. 2 黒鉛、鉄などの透過中性子スペクトル測定

上述のように、KURの実験孔、E-3において、とくにその先端部が直接燃料要素を見る配置をとった場合、炉心より流出してくる高速中性子スペクトルはほぼ核分裂スペクトルに近い。そこで、この中性子ビームを黒鉛、鉄などの原子炉材料にあてて、その透過スペクトルの測定を行なった。これによって、透過試料の全断面積の評価が可能になる。このような実験は液体シンチレーションカウンタを用いて数多くなされているが³⁸⁾³⁹⁾ ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの方が分解能が優れているし、またデータ処理が簡単である。ただし、 ${}^6\text{Li}$ カウンタは検出効率が低い上に熱中性子に感じるので非常に厚い試料についてのいわゆる深い透過高速中性子スペクトル測定には向かない。

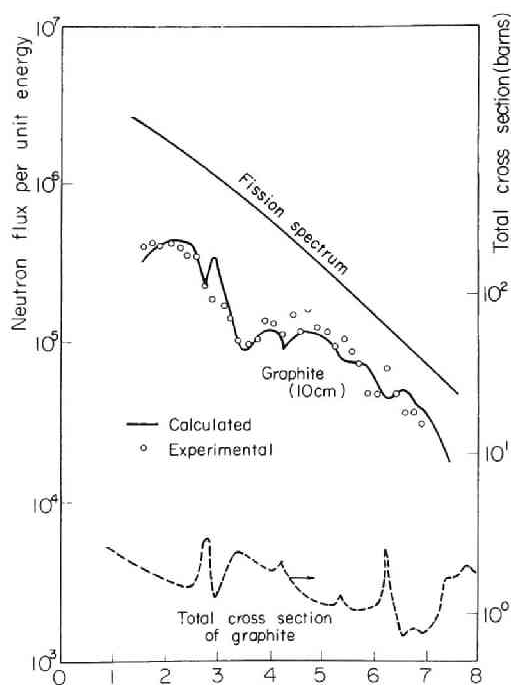


図3-45 黒鉛透過高速中性子スペクトル

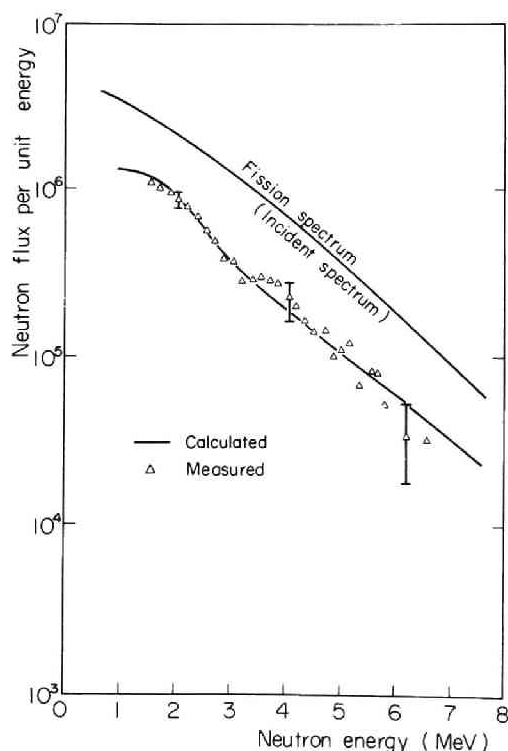


図3-46 鉛透過高速中性子スペクトル

測定はKURのE-3孔出口に透過試料を置いて行なった。配置は図3-42の右の図のとおりである。

まず、図3-45は厚さ10cmの黒鉛透過スペクトルを測定した結果である。ここで、計算値はBNL-325 (Second edition) を用いて求めた非衝突中性子スペクトルを示している。実験値はこの計算値にほぼ合致した。

次に、厚さ5cmの鉛透過スペクトルを図3-46に示す。この場合も実験値は計算値に誤差の範囲で合致している。

第3には、厚さ2.5cmおよび5cmの鉄透過スペクトルの測定を行なった。その結

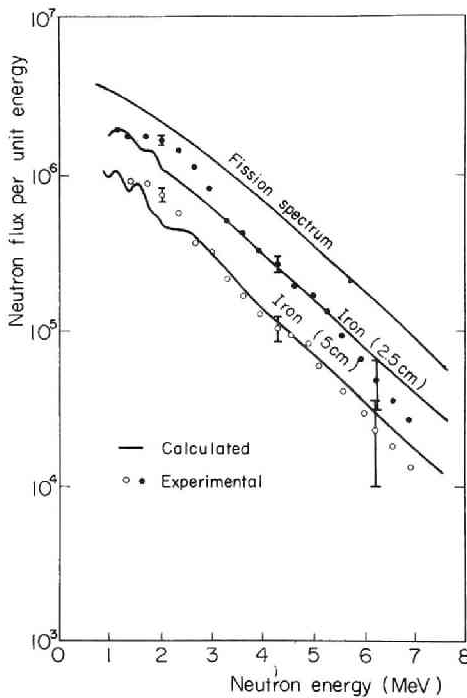


図3-47 鉄透過高速中性子スペクトル

果は、図3-47に示すように2.5MeVから5MeVの間では実験値と計算値はよく合っている。これに反して、2.5MeV以下では実験値が計算値より相当大きくなり、また5MeV以上では実験値の方が計算値より小さくなった。

Strakerはその報告の中で20cmおよび30cmの鉄透過スペクトルのうち約3MeV以下の部分における値が、ENDF/BやBNL-325とKFK-453を用いた計算値より遙かに大きくなり、鉄に関するこれらの断面積データに問題があるといっている³⁹⁾。したがって今回のデータのうち、低いエネルギーの結果はStrakerの結果と定性的に

一致する。しかし、5MeV以上における傾向はStrakerの結果ともあまり合わない。

最後に、厚さ5cmおよび10cmの重晶石入り重コンクリート層を透過した高速中性子のスペクトルを測定した。この重コンクリートの化学組成は表3-5に示すよう

に硫酸バリウムを主としたものであるが、相当量の水を含んでいる。含水量を熱天秤で733℃まで加熱して測定した結果、6.8(mg/試料100mg)となった。重コンクリート透過中性子スペクトルの測定結果を図3-48に示す。図に示してあるこの重コ

表3-5 重コンクリート(パライト系)試料組成分析値*

成 分	組成の重量比
SiO ₂	1.6 %
Ba SO ₄	78.2
Ca O	11.3
Al ₂ O ₃	3.4
Fe ₂ O ₃	1.8
Sr O	8.8

* 松下電器産業(株) 中央研究所遠井淳友氏の御厚意による

ンクリートの非衝突スペクトルの計算値はUCRL-5351⁴⁰⁾を用いて求めたもの

である。実験値と計算値の一致は良い。この場合、高速中性子スペクトルの形状を決定する主な因子は酸素であり、バリウムその他の重い元素は透過中性子の大きさは変えるが形状にはあまり関与しない。

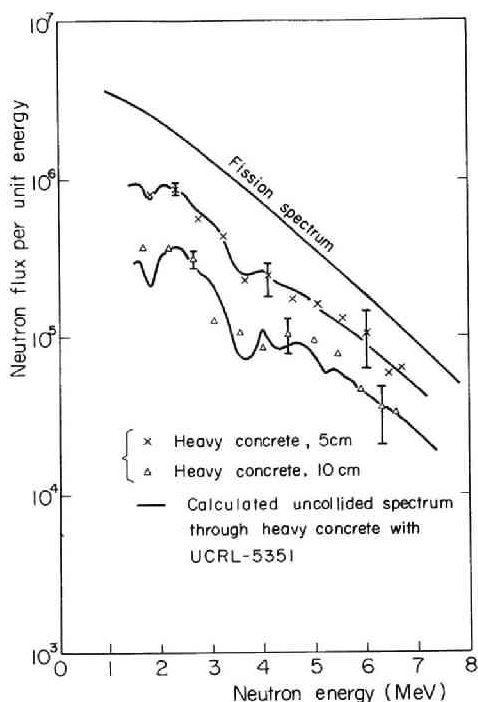


図3-48 重コンクリート(重晶石入り)透過高速中性子スペクトル

第5節 結 言

原子炉の高速中性子スペクトル測定に適した shielded diode 型 ⁶Li および ³He サンドイッチカウンタに関する理論的検討と実験的検討を行なった結果、これらのカウンタの特性を明らかにすることができた。

次いで、これらのカウンタを原子炉

の高速中性子スペクトルの測定に応用し、実験孔から流出する高速中性子スペクトルや2、3の媒質透過高速中性子スペクトルの形状を求めた。

本章で得られた知見を箇条書きすると次のとおりである：

(1) コロジオン膜上に ${}^6\text{LiF}$ を真空蒸着する方法によって ${}^6\text{LiF}$ 膜を試作し、これをシリコン検出器ではさんだ形の ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタを製作した。

${}^6\text{LiF}$ およびコロジオン膜の厚さは α 線のエネルギー損失から測定する方法をとった。カウンタヘッドとして、テスト用のもの、 ${}^3\text{He}$ カウンタと共用できるものおよび ${}^6\text{LiF}$ 付きコロジオン膜と ${}^7\text{LiF}$ 付き膜が外部から遠隔操作で任意に交換できるものの3種を試作したが、いずれも目的どおり動作した。

(2) ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの中性子検出効率をメッシュ法とモンテカルロ法によって計算した。その結果、シリコン検出器の間隔が小さい場合メッシュ法による結果がモンテカルロ法による結果よりやや小さくなったが、中性子エネルギーに対する形状は殆んど変らなかった。第2に、 ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応で生成するトリトンが重心系で等方とした場合と等方でない実験値を使用した場合を比較した結果、中性子検出効率には大差がないことが分った。ここで試作した ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタは shielded diode 型としたため効率が $10^{-7} \sim 10^{-9}$ と非常に小さくなり、密着型の ${}^6\text{Li}$ カウンタや ${}^3\text{He}$ カウンタと比べ $10^{-1} \sim 10^{-2}$ 倍となった。

(3) ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタのエネルギー分解能に関し、 ${}^6\text{LiF}$ 付きコロジオン膜中におけるトリトンと α 粒子のエネルギー損失分布をメッシュ法によって求め、この分布の半値巾を分解能の値として算出した。この値は ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$ 反応が等方的である場合とそうでない場合とで差異がない。また、2 MeV の中性子に対するエネルギー分解能の概略値は $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 単位で表わした ${}^6\text{LiF}$ 膜厚の数字に keV をつけた値となる。

(4) ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタの特性テストの結果、(i) 厚さ $150 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の ${}^6\text{LiF}$ 膜のカウンタで熱中性子ピークの半値巾が約 240 keV となり計算値と合う、(ii) シリコン検出器のしゃへいが不十分な場合、原子炉の実験孔に置いた ${}^6\text{Li}$ カウンタは炉出力増加とともに分解能が劣化する、(iii) バックグラウンドの検討のために、 ${}^7\text{LiF}$ 付きコロジオン膜、コロジオン膜、膜なしの場合を比較した結果、前の2つで計数はほぼ一致する。KURの実験孔における高速中性子スペクトル測定の場合のバックグラウンドの計数は2～4 MeV の間でやや多くて十数%となる。
(iv) 厚い ${}^6\text{LiF}$ 膜のカウンタでエネルギー分解能を測定した結果は計算値とよく合

う。(v) 単色の高速中性子によるテストの結果、中性子エネルギーとパルス波高の直線性は良好である。

(5) ^3He サンドイッチカウンタの中性子検出効率およびエネルギー分解能についてメッシュ法による計算を行なった結果 (i) ^3He ガス圧力が 0.5 kg/cm^2 の ^3He カウンタの効率は厚さ $500\text{ }\mu\text{g/cm}^2$ の ^6LiF 膜を用いた ^6Li カウンタの約10倍となる、(ii) ^3He ガス中における陽子とトリトンのエネルギー損失の拡がりは ^3He ガス圧が 1 kg/cm^2 で $100\sim 200\text{ keV}$ となり、 ^6Li カウンタより相当狭い。

(6) ^3He サンドイッチカウンタの特性テストの結果、(i) ^3He ガス圧 0.25 kg/cm^2 のカウンタの熱中性子ピークの半値巾が約 40 keV となり非常に良い分解能である、(ii) ^3He ガスをぬいてバックグラウンドを求めると非常に小さい値となる。しかし、 γ 線パイルアップの影響は ^6Li カウンタより遙かに大きい、(iii) ^3He ガス圧力と効率の関係についてしらべると、低エネルギーの中性子を測るような場合には ^3He ガス圧力を上げると効率が下ることがある。これは、生成したトリトンが ^3He ガス中でエネルギーを損失するためである。このことは実験上注意すべきことである。高速中性子についてみると ^3He ガス圧力と効率はほぼ比例する、(iv) 単色の高速中性子によるテストの結果、中性子エネルギーとパルス波高の直線性は良好である。

(7) ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタによって KUR 実験孔の高速中性子スペクトルを測定した。2つの異った炉心配置の場合について、高速中性子スペクトルを求めその結果をしきい検出器や原子核乾板によって求めた結果や理論計算によって求めた結果と比べるとほぼ一致した。

(8) 同じ場所において、2、3の原子炉材料の透過高速中性子スペクトルを ^6Li サンドイッチカウンタによって測定し計算値と比較した。黒鉛、鉛および重コンクリートについては両者はほぼ一致したが、鉄については一致はあまり良くない。これは鉄の中性子断面積データに問題があることを示唆している。

(参 考 文 献)

- 1) 木村逸郎： ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンターによる速中性子スペクトル測定，
応用物理学会放射線分科会講演集，Vol. 2，No. 2，25 (1967) .
- 2) 木村逸郎： サンドイッチカウンターによる速中性子スペクトル測定，原子力
学会炉中性子研究専門委報告 No. 4，論文番号 8 (1967) .
- 3) 木村逸郎，林 脩平，小林捷平，石原信二，柴田俊一： ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$
サンドイッチカウンターによる高速中性子スペクトルの測定，K U R R I -
T R - 67 (1969) .
- 4) I. Kimura , K. Kobayashi and T. Shibata : J. Nucl. Sci. Technol.,
8, 59 (1971) .
- 5) M. G. Marcazzan et al. : Phys. Letters, 1, 21 (1962) .
- 6) M. Birk et al. : Nucl. Instr. Meth., 21, 197, (1963) .
- 7) J. A. Shannon and J. B. Trice : *ibid.* , 41, 255 (1966) .
- 8) G. Dearnaley et al. : IRE Trans. NS- 9, No. 3, 174 (1962) .
- 9) T. A. Love and R. B. Murray : *ibid.* , NS - 8, No. 1, 91 (1961) .
- 10) M. S. Bokhari and V. V. Verbinski : Trans. American Nucl. Soc.,
7, 370 (1964) .
- 11) F. J. Muckenthaler et al. : *ibid.* 6, No. 2, 424 (1963) .
- 12) A. W. Manning et al. : Nucleonics, 23, No. 4, 69 (1965) .
- 13) R. J. Huber and E. F. Bennett : Trans. American Nucl. Soc.,
9, 91 (1966) .

- 14) M. G. Silk : "*The Determination of the Fast Neutron Spectrum in Thermal Reactors by Using Lithium-6 and Helium-3 Semiconductor Spectrometers*", AERE-R 5183 (1966) .
- 15) M. E. Windsor and S. B. Wright : J. Nucl. Energy, **20**, 465 (1966) .
- 16) J. W. Weale et al. : *Proc. International Conf. on Radiation Measurements in Nuclear Power*, p. 231, Institute of Physics and Physical Society, London, 1966.
- 17) H. Bluhm et al. : Trans. American Nucl. Soc., **10**, 576 (1967)
- 18) R. A. Rydin : Trans. IEEE, **NS-14**, No.1, 377 (1967) .
- 19) M. G. Silk and M. E. Windsor : J. Nucl. Energy, **21**, 17 (1967) .
- 20) V. V. Verbinski and M. S. Bokhari : Nucl. Instr. Meth., **46**, 309 (1967) .
- 21) M. G. Silk : J. Nucl. Energy, **22**, 163 (1968) .
- 22) H. Bluhm and D. Stegemann : Nucl. Instr. Meth., **70**, 141 (1969) .
- 23) T. Yang and C. Yen : J. Nucl. Sci. Technol., **8**, 262 (1971) .
- 24) W. Whaling : "*The Energy Loss of Charged Particles in Matter*", *Handbuch der Physik*, XXXIV, p. 193, Springer-Verlag, Berlin, 1958.
- 25) R. A. Rydin : "*Resolution, Efficiency and Background Effects in Semiconductor Sandwich Fast Neutron Spectrometers*", EUR-2793e (1966) .

- 26) H. A. Bethe and J. Ashkin : "*Passage of Radiations through Matter*",
in *Experimental Nuclear Physics* (ed. by E. Segrè). Vol. 1, John
Wiley and Sons, Inc., 1953 .
- 27) S. K. Allison and S. D. Warshaw : *Rev. Mod. Phys.*, **25** , 779
(1953) .
- 28) R. D. Evans : *Atomic Nucleus* , McGraw Hill, 1955 .
- 29) H. K. Raynolds et al. : *Phys. Rev.*, **92** , 742 (1953) .
- 30) M. G. Sowerby : *Report of IAEA Panel on Nuclear Standards for
Neutron Measurements at Brussels*, IAEA-107 p. 196 (1967) .
- 31) M. D. Goldberg et al. : "*Angular Distributions in Neutron-Induced
Reactions*" Vol. 1, Z = 1 to 22 , BNL-400, Second Edition (1962) .
- 32) J. R. Stehn et al. : "*Neutron Cross Sections*" Vol. 1, Z = 1 to
20 , BNL-325 , Second Edition, Suppl. No.2 (1964) .
- 33) E. D. Cashwell and C. J. Ewerett : *A Practical Manual on the
Monte Carlo Method for Random Walk Programs* , Pergamon Press,
New York, 1959 .
- 34) R. A. Rydin : "*Design Considerations and Calculations for a ${}^6\text{Li}$
Semiconductor Sandwich Fast Neutron Spectrometer Experiment*",
EUR 2712 e (1966) .
- 35) 木村逸郎, 林 脩平, 柴田俊一 : KURの高速中性子スペクトル, (IV)
原子核乾板による測定 , 昭和42年原子力学会年会要旨集, E-14 (1967) .
- 36) S. Francescon : AEEW-R 273 (1963) .

- 37) I. I. Bondarenko (ed.) : *Group Constants for Nuclear Reactor Calculations* , Consultant Bureau, New York, 1964 .
- 38) C. E. Clifford et al. : Nucl. Sci. Eng., **27** , 299 (1967) .
- 39) E. A. Straker : *ibid.* , **34** , 114 (1968) .
- 40) R. J. Eowerton : UCRL - 5351 (1958) .

第Ⅳ章 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積の測定および

その高速中性子測定への応用に関する研究^{1)~3)}

第1節 緒 言

すでに第Ⅱ章でも述べたように、原子炉の高速中性子束およびそのエネルギースペクトルの測定のためにしきい検出器が極めて有用である。しかしながら、通常よく用いられるしきい反応は、しきい値が1 MeV ないし数 MeV と高いため、数百 keV あるいはこれ以下の高速中性子[※]に関する情報を得ることが不可能である。ところが、原子炉の高速中性子による材料の照射損傷量の評価などのためにこのようなエネルギー領域の高速中性子スペクトルを求めることが必要とされている。

このために、しきい値のとくに低いしきい反応として、2、3のしきい核分裂反応、 (n, f) 反応と非弾性散乱、 (n, n') 反応が注目されている。例えば、しきい値の低い (n, f) 反応として $^{237}\text{Np}(n, f)$ 反応^{※※}が注目され、箔として使用され始めている。また、 ^{237}Np 核分裂計数管も製作されている。このほか、 ^{234}U や ^{240}Pu も同様の核分裂断面積を有している。しかしながら、このようなしきい核分裂反応は箔としての取扱いが簡単でなく、しかも高価であること、照射後の誘導放射能の測定とそのデータ処理が複雑であること、断面積や核分裂収率の実験データの精度がよいことなどのためにあまり一般的なものとはいえない。

これに反し、 (n, n') 反応は箔の取扱いが容易であり、その誘導放射能の測定にも問題が少いので一般性がある。しかしながら、断面積に関する実験データは不十分で精度がよいものが多いのが現状である。

本章では原子炉の高速中性子とくに低いエネルギーの高速中性子の測定にとって有用であると考えられる $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積の測定を

※ 第Ⅰ章で定義した高速中性子の下限またはそれ以下のエネルギーの中性子

※※ 厳密な意味ではしきい反応ではない。

第1の目的とした。次いで、高速中性子による照射損傷という観点に立ち、この反応を利用して原子炉の高速中性子束を測定する意義について考察を加えた。

原子炉の高速中性子束測定のために (n, n') 反応を選ぶ場合第Ⅱ章で挙げたしきい検出器使用のための条件に加えて、次のような条件を充たすことが要求される：

- (1) 生成する準安定レベルの半減期が適当であること、
- (2) 質量数が1つ小さい同位元素の (n, γ) 反応で、同じ準安定レベルが生成しないこと、
- (3) 原子炉の γ 線による (γ, γ') 反応による準安定レベル生成が無視できること。

しかしながら、一般に (n, n') 反応は断面積データや準安定レベル崩壊に関するデータの不足から、現在までのところ $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応のみがある程度使用されているにすぎない。しかしながら、これ以外にもいくつかの (n, n') 反応が使

表4-1 (n, n') 反応で比較的長寿命の準安定核を生成する核とその準安定核の性質
(Köhler and Knopf⁴⁾)

同位体	存在比 %	基底状態		準安定核	
		スピン パリティ	エネルギー keV	スピン パリティ	半減期
^{93}Nb	100	$9/2^+$	29	$1/2^-$	13.6 a
^{103}Rh	100	$1/2^-$	40	$7/2^+$	58 m
^{119}Sn	8.58	$1/2^+$	89	$11/2^+$	245 d
^{109}Ag	48.65	$1/2^-$	88	$7/2^+$	39 s
^{107}Ag	51.35	$1/2^-$	94	$7/2^+$	44 s
^{77}Se	7.58	$1/2^-$	161	$7/2^+$	17.5 s
^{135}Ba	6.59	$3/2^+$	270	$11/2^-$	28.7 h
^{115}In	95.72	$9/2^+$	335	$1/2^-$	4.5 h
^{87}Sr	7.02	$9/2^+$	390	$1/2^-$	2.8 h
^{113}In	4.82	$9/2^+$	393	$1/2^-$	1.7 h
^{111}Cd	12.75	$1/2^+$	397	$11/2^-$	49 m
^{197}Au	100	$3/2^+$	410	$11/2^-$	7.2 s
^{199}Hg	16.84	$1/2^-$	530	$13/2^+$	42 m
^{137}Ba	11.3	$3/2^+$	661	$11/2^-$	2.6 s
^{89}Y	100	$1/2^-$	919	$9/2^+$	16 s
^{190}Os	16.4	0^+	1700	10^-	9.9 m
^{204}Pb	1.3	0^+	2190	9^-	67 m

用される可能性を有している。Köhler and Knopf ⁴⁾は こうした可能性を検討して表4-1のような核種をとりあげている。この表からみて、準安定レベルのエネルギーが低く、したがってしきい値も低いと考えられる (n, n') 反応としては ^{93}Nb $(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ や ^{103}Rh $(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応などがある。 ^{93}Nb $(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応に関しては、Fabry がその有用性を指摘し ⁵⁾、その反応断面積も理論的に考察しているが ⁶⁾、生成核 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の半減期さえ、実験データが不十分な現状であり ⁷⁾、まだ実用化はほど遠い。

^{103}Rh $(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の利用に関しては、Brisbois ら ⁸⁾ が研究に着手し、そのすぐ後に Trebilcock ⁹⁾ もこの反応によって高速中性子束の測定を試みた。その結果、この反応は断面積が比較的大きいことおよび生成された $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の測定にあまり問題がないことが明らかになった。しかしながら、この反応の断面積について調査してみると実験データ間の不一致が著しいことが分る。まず、Vogt and Cross はこの反応断面積を計算した ¹⁰⁾。一方、Beckurts and Wirtz の教科書 ¹¹⁾ には、Rothman らの測定結果 ¹²⁾ をのせているが、これでは中性子のエネルギーが 600 keV の近傍で断面積に共鳴状のピークがあるとしている。また、Butler and Santry はタンデム型バンデグラフ加速器を用いることによって非常に広いエネルギー範囲にわたり、この反応の断面積の測定を行なっているが ¹³⁾ この値は Vogt and Cross の値 ¹⁰⁾ と相当大きく相違している。その他、核分裂中性子や原子炉中性子に対する平均断面積の測定も、2、3 報告されているが、やはり実験値間の一致は良くない ^{4) 6) 14)}。

このような状況に鑑み、ここではバンデグラフ加速器による単色中性子を用いて ^{103}Rh $(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積の測定を行なった。この場合、高速中性子束の絶対値の求め方に留意し、理論計算によって算出した値を ^{115}In $(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応による測定値およびマイラー膜とシリコン検出器を組み合わせた反跳陽子カウンタによる測定値と比較検討して用いた。

さらに本論文では ^{103}Rh $(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のようにしきい値の低いしきい反応によって原子炉の高速中性子束を測定することの意義について考察する。とくに高速中性子による原子炉材料等の照射損傷を評価するさい、通常よく用いられる高

いしきい値のしきい検出器によって求めた高速中性子束は損傷量に比例しない。そこで、材料中における反跳粒子の数、すなわち照射損傷に直接関係する量と高速中性子束の値との比例性を得る上で、このようなしきい反応を使用することの優秀性を示す。

第2節 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積の測定

2. 1 中性子源

単色の高速中性子源としては、日本原子力研究所の2 MeV バンデグラフ加速器による $\text{T}(p, n)^3\text{He}$ および $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ 反応を用いた。この場合 主としてトリチウムまたは重水素ガスタージェットを使用することによって発生中性子のエネルギーの広がりを小さくした。ガスタージェットは直径 10 mm、長さ 10 mm の円筒であり、真空部との間は厚さ約 1.1 mg/cm^2 のニッケル箔によって仕切られていた。この中にバンデグラフで加速された陽子イオンや重陽子イオンを打ちこんで上記の反応を起こさせる。イオン電流は、このニッケル箔の破損を防ぐために $0.8\text{ }\mu\text{A}$ 程度以下とした。角度依存の中性子エネルギーとその収率は、主として Blumberg and Schlesinger の表¹⁵⁾ および Fowler and Brolley の方法¹⁶⁾ によって求めた。この中性子収率は、後述のように $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応による測定値および反跳陽子カウンタによる測定値と比較した。

目的とするロジウム箔および中性子束校正用のインジウム箔の照射位置は、ガスタージェット中心部から 45 mm とし、 30° おきに配置した。この位置における中性子束はビームの前方方向で $10^4 \sim 10^5\text{ n/cm}^2/\text{sec}$ 程度であった。中性子エネルギーの広がりは約 150 keV 以下であったものと推測できる。これは前章で述べた ^3He サンドイッチカウンタを用い、エネルギーが 4, 8 MeV の中性子のピークの巾から求めた。なお、トリチウムガスタージェットのほか、トリチウム-Zr メタルターゲットを使用した¹⁷⁾が、これは主として相対測定であった。

2. 2 高速中性子束の絶対値の検証

バンデグラフからの単色の高速中性子の収率を検証するための1つの手段として、断面積データが比較的精密に求められている $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の断面積の測定を行ないその結果を従来値と比較した。

インジウム箔は純度99.999%以上の帯融解インジウムインゴットを圧延し、12mm×12mm×1mm角にしたものを使用した。照射後、 $^{115\text{m}}\text{In}$ からの0.355 MeVの γ 線を直径7.62cm、厚さ7.62cmのNaI(Tl)シンチレーションカウンタによって測定した。なお、このシンチレータの γ 線光電ピーク効率はいくつかによって較正された ^{22}Na および ^{137}Cs を用いて求めた。

測定結果を図4-1に示す。この図にはMartinらの結果¹⁷⁾、Heertjeらの結果¹⁸⁾、Margolisの値¹⁹⁾およびBresestiらが相互比較して求めた値²⁰⁾を一緒に示してあるが、ここで求めた結果はMartinらの結果をはじめ他の結果ともほぼよい一致を示している。ただし、中性子エネルギーが4MeV以上になると、Martinらの値は他の値よりやや低くなっている。最近、著者らはこのエネルギー領域における $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応断面積についてさらに詳細な実験的検討を行なっているが²¹⁾、その結果はMartinらの値より

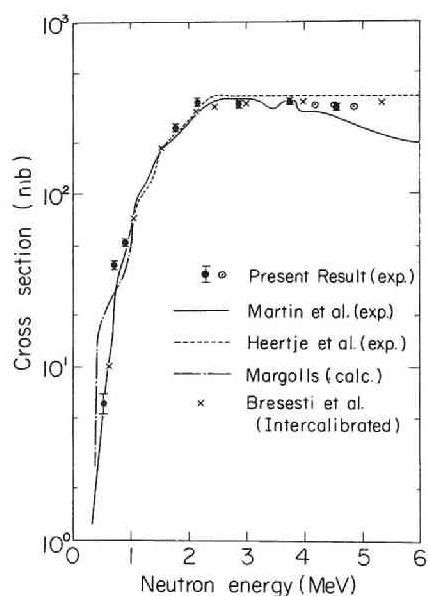


図4-1 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応断面積
このうち、黒丸印(●)、白丸印(○)は本研究の結果である。ただし、前者は中性子束の値を計算によって出したのに対し、後者は反跳陽子シリコン検出器法によって中性子束の値を求めた

大きい。さらに、念のために、ここで求めた $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応のエネルギー依存断面積の値を用いて核分裂中性子スペクトルに対する平均断面積^{*}を求めると表4-2のようになり 現在までに発表された多くの結果および第V章で述べる核

* より詳しい定義およびその値に関する検討考察は第V章に示す。

表 4-2 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応断面積データ*

参 考 文 献	σ_0 (mb)	$\bar{\sigma}$ (mb)	E_{eff} (MeV)	E_{th} (MeV)
本 論 文 **	368 ± 22	177 ± 10	1.65	—
Fährmann ²²⁾	360	170	1.5	—
Beckurts ¹¹⁾	350	171	1.65	0.335
Zijp ²³⁾	—	179	1.5	—
Berwanger ²⁴⁾	370	—	1.766	—
Delattre ²⁵⁾	—	—	1.5	—
Fabry ²⁶⁾	260	179 ± 19	1.05	—
Bresemi ²¹⁾	—	177 ± 6.0	—	—
Kanda ¹⁴⁾	—	174 ± 5.3	—	—
Simons ²⁷⁾	—	174	—	—
本論文(核分裂板)***	—	175 ± 2	—	—

* 表 2-6 で核データ等の詳細を示した

** ここで求めたエネルギー依存断面積と Leachman 型の核分裂中性子スペクトルを用いて算出した値、McElroy 型核分裂スペクトルを用いた値との比較は第 V 章において述べる

*** 核分裂板を用いて直接求めた平均断面積の値、詳細は第 V 章 参照

分裂板を用いて得た結果と非常によく一致した。

このように、前述の計算法による中性子束の値を用いて求めた $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応断面積の値が従来の値とよく合致したことからして、この中性子束の計算値が正しいことが分る。

高速中性子束の絶対値をさらに検証するために、マイラー膜とシリコン検出器を組み合わせた反跳陽子カウンタによる測定を行なった。厚さ 30μ のマイラー膜をシリコン検出器の前につけて、マイラー膜からの反跳陽子をシリコン検出器によって計数し、マイラー膜を外してバックグラウンドを計数して上記の値から差し引いた。この反跳陽子カウンタによる中性子検出効率は五藤氏らの計算結果²⁸⁾を使用した。このようにして求めた高速中性子束の値は前述の中性子束の計算値と 6% 以内で合致した。

2. 3 ロジウム箔の照射と誘導放射能の測定

ロジウム箔試料としては、米国 Reactor Experiments Inc. 社製の箔 (# 540) を使用した。これは純度 99.9%、直径 12.7mm、厚さ約 0.05mm、重さ約 70mg である。

ロジウムの核レベル構造は図 4-2 のようになっている⁷⁾。このうち半減期 57 分

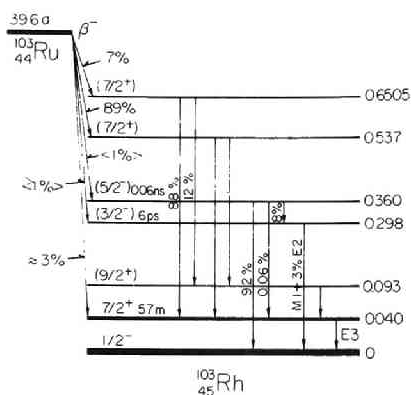


図 4-2 ^{103}Rh 核レベル構造図 (Table of Isotopes ⁷⁾)

の準安定レベル (エネルギー 40 keV, $\frac{7}{2}^+$) の崩壊 (E 3) に伴う 20 keV の X 線を測定に用いた。この準安定レベルの崩壊は E 3 転移であるため、内部電子転換効率が大きく、内部転換係数は約 500 程度といわれている ²⁹⁾。一方、理論値として 1,000 以上という報告もある ³⁰⁾。この内部転換に伴ない X 線の放出が起る。とくに 20 keV の K - X 線の放出が顕著である。 $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の 1 崩壊当りにでる 20 keV、X 線の数について、2、3 の報告があるが ²⁹⁾、ここでは最近の Bresesti の値 ³¹⁾、 0.0700 ± 0.0035 を採用した。

20 keV の X 線は、厚さ 0.6 mm の NaI (Tl) シンチレーションカウンタによって測定した。これは厚さ 0.1 mm のベリリウム窓を有し、DuMont 社製光電子増倍管、6292 にとりつけられたものである。このカウンタによって求めた $^{103\text{m}}\text{Rh}$ その他の X 線あるいは γ 線のパルス波高分布を図 4-3 に示す。20 keV の X 線の光電ピークの時間的変化を追跡した結果は図 4-4 のようになり、半減期 57 分の線によくのった。

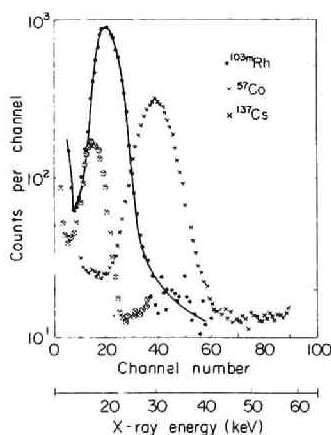


図 4-3 Be 薄窓つき薄型 NaI (Tl) シンチレーションカウンタによって測定した $^{103\text{m}}\text{Rh}$ その他の X 線あるいは γ 線のパルス波高分布

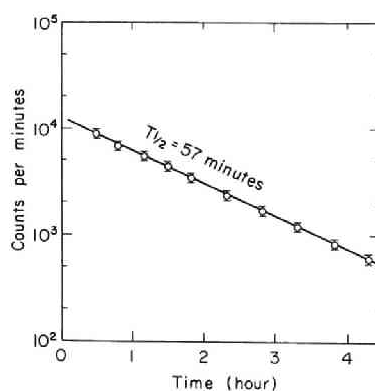


図 4-4 $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の 20 keV X 線光電ピークの時間的減衰

次に、この薄型 NaI (Tl) シンチレーションカウンタの20keVのX線検出効率は以下に述べるように薄い ^{103}Ru の線源を用いることによって求めた。三塩化ルテニウム $\text{RuCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を京大原子炉、KURの黒鉛熱中性子設備において照射し、 $^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$ 反応によって ^{103}Ru を作った。 ^{103}Ru は図4-2にも示したように、半減期39.6日で β 崩壊するが、そのうち約99.4%は $^{103\text{m}}\text{Rh}$ を経由する。この ^{103}Ru の放射能を測定し $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の放射能の値を求めた。この場合、試料中でのX線の減衰を避けるため ^{103}Ru は薄い膜とした。実験に当っては、まず約100mgの $\text{RuCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を50mlの水に溶かし、これに約400mgのKClを電解質として加えた。このあと図4-5に示すような定電位電解装置によって、ルテニウ

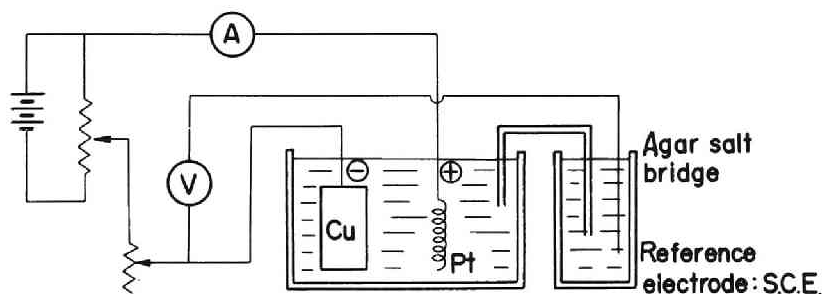


図4-5 ルテニウム、ロジウムなどの電着に用いた定電位電解装置ブロック図
(ロジウム電着の場合のセット電位-0.4V、ルテニウム電着の場合のセット電位-0.7Vとした)

ムを銅板上に電着した。この際、電着が必要な場所以外には白色ワセリンを塗布した。約60秒間の電着時間中に流れた電気量からルテニウムの電着量を求めた。その値は約4mg/cm²程度であった。一方、 ^{103}Ru の量は、0.497MeVの γ 線を直径3.81cm、厚さ3.81cmのNaI (Tl) シンチレーションカウンタによって測定することによって求めた。なお、このNaI (Tl) シンチレーションカウンタの γ 線検出効率はIAEAによって較正された ^{57}Co 、 ^{203}Hg 、 ^{137}Cs および ^{54}Mn 標準線源を用いて実験的に求めた。

ロジウム箱中でもX線の自己吸収が起る。20keVのX線の自己吸収の量を評価するために、照射したロジウム箱の上に未照射のロジウム箱を置いて、このX線の減衰を測定した結果、自己吸収係数は 0.663 ± 0.0086 となった。

2. 4 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積測定の結果と討論

以上述べた方法によって求めた $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積の測定結果を図4-6および表4-3に示す。この測定値はかなりの期間を置いて4回独立に測定した結果を平均したものである。4回ともとくに大きな偏差はなかった。

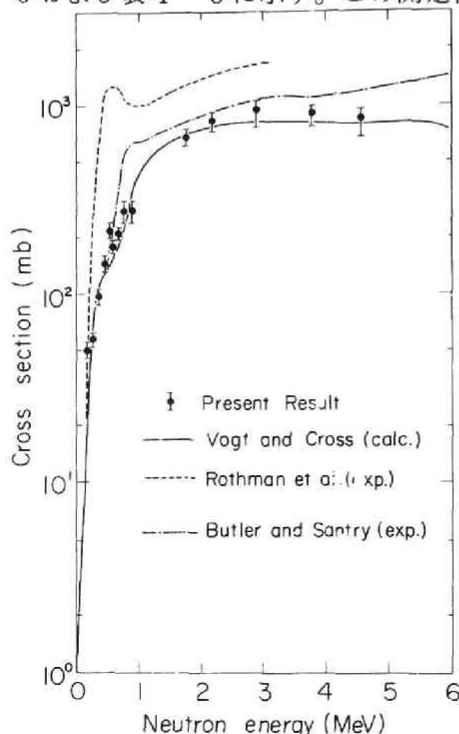


図4-6 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積

表4-3 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積測定値

中性子エネルギー	断面積 (mb)
180 (keV)	51 ± 5
280	57 ± 5
360	98 ± 8
480	148 ± 6
570	218 ± 13
580	179 ± 9
680	211 ± 10
770	265 ± 30
890	267 ± 30
1.8 (MeV)	688 ± 75
2.2	765 ± 92
2.9	968 ± 135
3.8	912 ± 109
4.6	863 ± 136

誤差としては、中性子エネルギーが1MeV以下では $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の放射能測定に伴う統計誤差を考えたのに対し、1.5MeV以上においては上述の4回の測定結果の間の分散を考えている。

今回の測定結果はVogt and Cross の値¹⁰⁾に近く、Butler and Santry の値より相当小さい。また、Beckurts and Wirtz の教科書¹¹⁾に示されているRothmanらの値¹²⁾とは形状も大きさも異っている。たゞこのRothmanらの値は、 ^{103}Rh による中性子の非弾性散乱 $^{103}\text{Rh}(n, n')$ 全体を求めたものであり、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ を与えるものではなかった。

従って、これを引用したBeckurts and Wirtz の方に問

題があったものと考えられる。Beckurts からの私信でも彼はこれを認めている³²⁾。

次に、このエネルギー依存の $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積から核分裂中性子スペクトルに対する実効断面積および平均断面積を計算し、従来の値と比較したものを表 4-4 に示す。この表からみると、Beckurts and Wirtz の値と Zijp の値は

表 4-4 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積データ

参 考 文 献	σ_0 (mb)	$\bar{\sigma}$ (mb)	E_{eff} (MeV)	E_{th} (MeV)
本 論 文 *	960 ± 55	558 ± 32	1.28	—
Roy 10)	—	535.8	—	0.04
Fährmann 22)	—	—	1.1	—
Beckurts 11)	1,500	1,093	0.9	0.04
Zijp 23)	—	1,093	0.6	—
Delattre 25)	—	—	0.8	—
Fabry 6)	—	589	0.90	—
Butler 13)	—	716 ± 40	—	—
Kanda 14)	—	566 ± 17	—	—
Köhler 4)	—	403 ± 40	—	—
本論文(核分裂板)**	—	560 ± 7	—	—

* ここで求めたエネルギー依存断面積と Leachman 型の核分裂中性子スペクトルを用いて算出した値、McElroy 型核分裂スペクトルを用いた値との比較は、第 V 章において述べる

** 核分裂板を用いて直接求めた平均断面積の値、詳細は第 V 章参照

上述のような理由で極端に大きくなったものと考えられるので、これらは除外して考えるべきである。これ以外では Butler and Santry の値が他の 4 つの値より 20% 以上も大きいことが目立っている。彼らは、タンデム型バンデグラフ加速器を使用し、 $\text{T}(p, n)^3\text{He}$ 、 $\text{D}(d, n)^3\text{He}$ および $\text{T}(d, n)^4\text{He}$ による広い範囲のエネルギーにわたる測定を行なっている。ここで、高速中性子束のモニタとして、5 MeV 以上においては $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応を使用し、5 MeV 以下ではいわゆるロングカウンタを使用している。彼らはこのロングカウンタの誤差は ±4 ~ 5% としているが、0.1 ~ 5 MeV というエネルギー範囲の中性子をこのようなロングカウンタによって絶対測定することはかなり困難なことであり、なお問題点が残存するのではないかと推定する。彼らの測定した各種のしきい反応断面積は他のグループの測定結果より一般に大きい。

Ribon²⁹⁾ は現在までの $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の断面積の値に関して次のよ

うに論評している： この反応の断面積の値に関する結論はまだ出せないが、核分裂中性子に対する平均断面積、 $\bar{\sigma}$ としては、Butler and Santry の値を少し修正した値、710 mb が良さそうであり、また一方、エネルギー依存断面積に関しては、

(1) 300 keV 以下では Butler and Santry の値、(2) 300 keV から 10 MeV にかけては、木村らの結果³³⁾の支持もあるので、Roy の値、(3) 14 MeV までの延長は Butler and Santry の値と Vogt and Cross の値を使うのが良い。

しかしながら、Ribon による上の評価には矛盾が見うけられる。すなわち、その後半に述べているようなエネルギー依存断面積が正しいと仮定すると、前半で出した核分裂中性子に対する平均断面積の値は本論文のように 500~600 mb の間に入り、710 mb というような大きな値にはならない。ただし、核分裂中性子に対する平均断面積を求めるさいに、ここでは Leachman 型の核分裂中性子スペクトルを仮定して使ったが、もし McElroy 型核分裂スペクトルを使用すれば平均断面積の値はかなり大きくなる^{*}。本論文で得られた $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積と McElroy 型核分裂中性子スペクトルを使用して平均断面積を計算すると 638 mb となる^{**}。これでもなお、Ribon の値、710 mb より 10% 程度小さい。

第 V 章で述べるように、核分裂板を使用して求めた $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の核分裂中性子に対する平均断面積の値は 560 ± 7 mb となり、ここで得られた平均断面積の値とよく一致している。また、Fabry がベルギーの原子炉 BR-2 において積分的に求めた平均断面積の値、589 mb は本論文の値よりやや大きい、それでも誤差の範囲内で一致する。一方、Köhler の値、403 mb は異常に小さいが、その理由はよく分らない。

第 II 章において、しきい検出器を用いた KUR の炉心内における高速中性子スペクトル測定の結果が他の測定法や理論計算による結果とよく一致することを示した(図 2-24 参照)。もしそこで用いた $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の断面積の値が小さすぎて、Butler and Santry の値の方が正しいのであれば、得られる高速中性子スペクトルの形状は遙かに硬くなり、他の測定法や理論計算による結果と著しく相

* この問題については第 V 章で詳しく論ずる。

** 表 5-14 参照

違する。

以上のような点から総合的に判断すると、未だ十分とはいえないが、本論文において得られた $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積および核分裂中性子に対する平均断面積の値は、かなり妥当なものと考えられる。

第3節 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応による照射損傷モニタ

3. 1 高速中性子による照射損傷と高速中性子照射量の関係

高速中性子による原子炉材料の照射損傷は、主として次のような過程によって引き起こされる：（１）中性子弾性散乱による反跳、（２）非弾性散乱による反跳、（３） (n, p) 、 (n, α) などの反応による反跳、（４） (n, p) 、 (n, α) 反応による水素ガス、ヘリウムガスの蓄積、（５） (n, γ) 反応による反跳、（６） (n, γ) 反応生成核の β 崩壊による元素の転換。

鉄の場合についてみると、2～3 MeV 以下の中性子では弾性散乱による反跳が主であり、これ以上のエネルギーの中性子では非弾性散乱による反跳が弾性散乱による反跳より多くなる³⁴⁾³⁵⁾。弾性散乱あるいは非弾性散乱によって反跳された鉄の原子は、さらに次々と他の鉄の原子を衝撃する。1つの原子を衝撃してたゞき出すに要する最低エネルギーを変位エネルギー E_d といい、鉄の場合、約25eV である。このような衝突過程を考察することによって、エネルギー E の中性子が何個の鉄原子をたゞき出すかを計算することができる。Kinchin and Pease のモデル³⁶⁾ によれば、エネルギーが E と $E + \Delta E$ の間に入る高速中性子によってたゞき出された原子すなわち変位原子の総数を $N(E) \Delta E$ とすると、

$$N(E) \Delta E \left\{ \begin{array}{l} = \frac{E_m}{4 E_d} \Delta E, \quad \text{for } E_m \leq E_i, \\ = \left(2 - \frac{E_i}{E_m} \right) \frac{E_i}{4 E_d} \Delta E, \quad \text{for } E_m > E_i. \end{array} \right\} \quad (4.1)$$

但し、ここで、

$$E_m = \frac{4M}{(M+1)^2} E, \quad \text{最大反跳エネルギー}, \quad (4.2)$$

M : 反跳原子の質量,
 E_d : 変位エネルギー,
 E_i : 電離しきいエネルギー,

この E_i は、

$$E_i = \frac{1}{16} \frac{M}{m} E_F = \frac{1}{16} \frac{M}{m} (3\pi^2)^{2/3} A_a^2 N^{2/3} E_R. \quad (4.3)$$

ここで、

m : 電子の質量,
 E_F : Fermi エネルギー
 A_a : 水素原子の Bohr 半径, 5.29×10^{-9} cm ,
 N : 単位体積の原子数,
 E_R : Rydberg 定数, 13.60 eV .

体心立方格子の鉄についてみると、 $E_i = 45$ keV となる。

この値を用いて、鉄の変位生成関数 $N(E)$ を計算してみると図 4-7 のようになる。最近、このような変位生成関数に関するより詳しい研究が 2、3 報告されてい

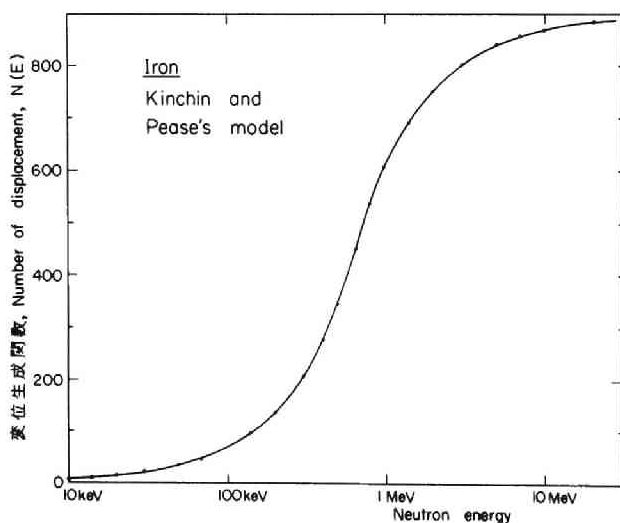


図 4-7 Kinchin and Pease のモデル³⁶⁾によって計算した高速中性子による鉄の変位生成関数

る³⁴⁾³⁷⁾³⁸⁾。しかし、これを実験的に求めた報告⁴⁴⁾では Kinchin and Pease のモデルが最も妥当であると結論している。

このように、中性子照射による変位生成関数が中性子エネルギーの関数であることからして、原子炉における材料の照射実験などにおいて、照射量を評価する場合、照射位置における中性子スペクトル $\phi_i(E)$ を考慮に入れること

が必要である³⁹⁾⁴⁰⁾。この位置における、材料の照射損傷関数 $D_i(E)$ を次のように定義する：

$$D_i(E) \Delta E = \sum_s(E) \phi_i(E) N(E) \Delta E \frac{\text{変位数}}{\text{cm}^2 \cdot \text{sec}} \quad (4.4)$$

ただし、 $\sum_s(E)$ は中性子散乱断面積であり、一応ここでは弾性散乱のみを考える。全体の照射損傷の生成率は、

$$D_i = \int_0^\infty D_i(E) dE = \int_0^\infty \sum_s(E) \phi_i(E) N(E) dE \frac{\text{変位数}}{\text{cm}^2 \cdot \text{sec}} \quad (4.5)$$

一方、この位置における第 j 番目のしきい反応の応答関数 $S_{ij}(E)$ を次のように定義する：

$$S_{ij}(E) \Delta E = \sigma_j(E) \phi_i(E) \Delta E \quad (4.6)$$

ここで $\sigma_j(E)$ は、このしきい反応の断面積である。いま、中性子のエネルギー E にかかわらず

$$\left. \begin{aligned} D_i(E) &\propto S_{ij}(E) \quad , \quad \text{すなわち} \\ \sum_s(E) N(E) &\propto \sigma_j(E) \end{aligned} \right\} \quad (4.7)$$

なる条件が成立すれば、高速中性子スペクトルの形状にかかわらず、

$$D_i \propto \int_0^\infty S_{ij}(E) dE = R_{ij} \quad (4.8)$$

となる。ただし、ここで R_{ij} は第Ⅱ章において定義したしきい検出器の反応率である。

照射損傷の実験は、いろいろな原子炉すなわち高速中性子スペクトルが相当大きく相違している場において行なわれている。したがって、それらの実験データを相互に比較検討するためには、照射損傷量に直接関係した高速中性子照射量を用いることが必要である。

ところが、照射実験における照射量を求めるためにしばしば $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応が用いられる。しかしながら、後に示すようにこの反応の応答関数 $S_{ij}(E)$ は、鉄などの $\sum_s(E) \phi_i(E) N(E)$ と比べると相当高エネルギー側へずれているため、高速中性子スペクトルが変化すると (4.7) および (4.8) 式は成立しない。

これに反し、よりしきい値の低いしきい反応では $\sigma(E)$ の形状が $\sum_s(E)N(E)$ に近ずき (4.8) 式が近似的に成立する。このような場合には、その反応は放射線損傷モニタとして有用となる。例えば Dahl and Yoshikawa⁴¹⁾ は $^{243}\text{Am}(n, f)$ 反応を、Fabry⁵⁾ は $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応を、また最近、Barry and Corbett⁴²⁾ は $^{237}\text{Np}(n, f)$ 反応を照射損傷モニタとして挙げている。しかし、これらのもののうち 核分裂反応は前述のように種々の困難がある。一方、 $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応は核データが極めて乏しい。そこで本論文では $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応から求めた高速中性子束を照射量とした照射損傷の評価について若干の検討を行なった。

3. 2 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応による照射損傷モニタ

Dahl and Yoshikawa⁴³⁾ にならい、3種類の形状をした原子炉スペクトル場において、鉄および炭素の照射損傷量と $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の反応率の関係について検討する。また、これ以外の反応の反応率とも比較する。

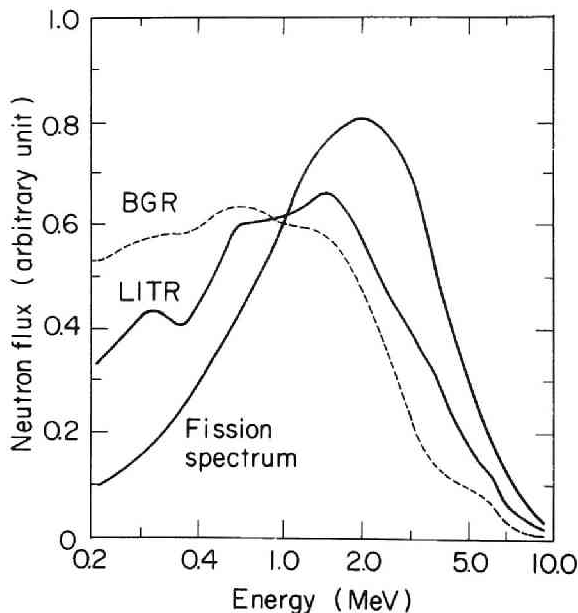


図4-8 放射線損傷量の検討に用いた3種類の中性子スペクトル⁴³⁾、ここでBGRは黒鉛減速炉、LITRは軽水減速炉である

図4-8は彼らが検討した3種類の原子炉スペクトルを示したものであり、これらは、核分裂中性子スペクトル(KUR炉心内はこれに相当する)、黒鉛炉(BGR)および軽水炉(LITR)のスペクトルである。

実際、これらの原子炉においては、鉄鋼材料の照射試験がしばしば試みられ、低温脆性

遷移温度の変化などが観測されているので、そうしたデータとも直接比較できる。

ここでは簡単のために、照射損傷の機構としては Kinchin and Pease のモデル³⁶⁾に従い (4.1) ~ (4.3) 式を使って計算を進めた。

鉄および炭素（黒鉛）の照射損傷関数 $D_i(E)$ と $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ および $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応の応答関数 $S_{ij}(E)$ とを一緒に比較した結果を図 4-9 に示

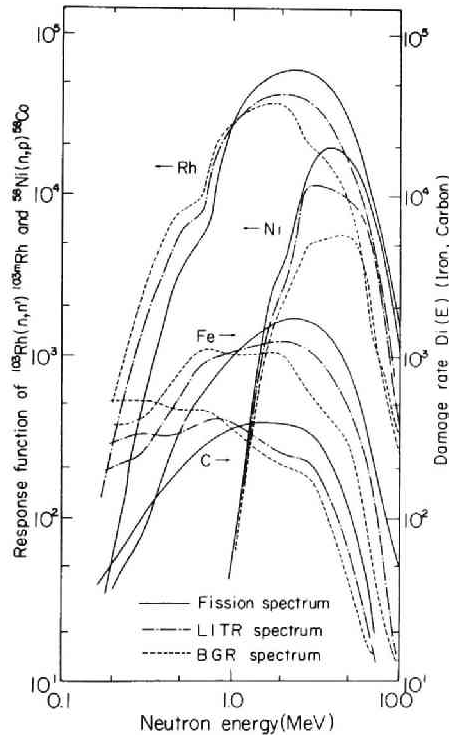


図 4-9 3 種類のスペクトルの高速中性子場における $^{103}\text{Rh}(n, n')$ $^{103\text{m}}\text{Rh}$ と $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応 応答関数と鉄および黒鉛の高速中性子による照射損傷関数の比較、しきい反応応答関数と照射損傷関数の形状が相似ている場合は、そのしきい反応が損傷モニタに適している

す。この図からみて、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の応答関数の形状は鉄や炭素の照射損傷関数の形状とほぼ似ており、(4.7) 式が近似的に成立つと考えられるのに反し、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応の応答関数の形状は高エネルギー側へかなり大きくずれている。

ここで、これらの関係を定量的に評価するために 次のように核分裂中性子スペクトル場 ($i = 1$ とする) に対する比をとる：

$$C_{ij} = \frac{\int_0^\infty D_i(E) dE}{\int_0^\infty S_{ij}(E) dE} \bigg/ \frac{\int_0^\infty D_1(E) dE}{\int_0^\infty S_{1j}(E) dE} = \frac{D_i R_{1j}}{D_1 R_{ij}} \quad (4.9)$$

この値 C_{ij} が、どんな高速中性子スペクトルに対しても 1 に近ければ、そのしきい反応 (j) は (4.8) 式を満足し、照射損傷モニタとして優れている。前述の 3 種類の高速中性子スペクトル場における C_{ij} の値を、表 4-5 に示す。この表の上は

表 4-5 放射線損傷率と各種しきい反応の反応率の比, C_{ij} の表

(1) 鉄の放射線損傷の場合

しきい反応 スペクトル	$^{103}\text{Rh} (n, n')$	$^{115}\text{In} (n, n')$	$^{32}\text{S} (n, p)$	$^{58}\text{Ni} (n, p)$	$^{27}\text{Al} (n, p)$	$^{24}\text{Mg} (n, p)$	$^{56}\text{Fe} (n, p)$	$^{27}\text{Al} (n, \alpha)$
核分裂スペクトル ($i=1$)	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
LITR スペクトル ($i=2$)	1.05	1.05	1.23	1.21	1.33	1.67	1.57	1.32
BGR スペクトル ($i=3$)	1.11	1.18	1.69	1.66	2.00	3.11	2.50	3.25

(2) 炭素 (黒鉛) の放射線損傷の場合

しきい反応 スペクトル	$^{103}\text{Rh} (n, n')$	$^{115}\text{In} (n, n')$	$^{32}\text{S} (n, p)$	$^{58}\text{Ni} (n, p)$	$^{27}\text{Al} (n, p)$	$^{24}\text{Mg} (n, p)$	$^{56}\text{Fe} (n, p)$	$^{27}\text{Al} (n, \alpha)$
核分裂スペクトル ($i=1$)	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
LITR スペクトル ($i=2$)	1.20	1.22	1.42	1.41	1.54	1.93	1.76	2.05
BGR スペクトル ($i=3$)	1.52	1.63	2.33	2.26	2.76	4.32	3.60	4.51

鉄の照射損傷について計算したものであり、下は炭素について計算したものである。この表からみて、 $^{103}\text{Rh} (n, n')$ ^{103}mRh 反応が高速中性子による照射損傷モニタとして非常に優秀であることが分る。しかしながら、例えば $^{58}\text{Ni} (n, p)$ ^{58}Co 反応を用いると、BGR で鉄を照射した場合、その照射量の評価において、1.66 倍、炭素を照射した場合には 2.26 倍もの誤差を生ずる可能性がある。さらに高いしきい反応、たとえば、 $^{27}\text{Al} (n, \alpha)$ ^{24}Na 反応などを使用すると 3 倍から 4 倍もの誤差が入ることが分る。

第4節 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の原子炉の高速中性子束測定

への応用

前述のように、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応は原子炉の高速中性子束測定のために有用であると考えられる。とくに、材料の照射損傷を評価するための照射量を与える上で意義がある。このために、すでにKURの照射設備や実験設備の高速中性子束は殆んどすべてこの反応によって求められた⁴⁵⁾。

$^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応によって、原子炉の高速中性子束の測定を行なった場合の問題点について考察する。まず第1に挙げられることは、この反応で生成する $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の半減期(57分)が短いことである。これは、原子炉の炉心内、照射設備あるいは実験設備の高速中性子束の測定のためには適当であるが、材料を長期間にわたって照射し、そのあとで照射損傷を求めるような実験における照射量の測定には向かない。したがって、こうした目的のためには、さらに別のしきい反応を探す必要がある。しかしながら、このような場合でも、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応によってあらかじめ高速中性子束の値を求めておけば、別のしきい反応は単に高速中性子束の時間積分用とすることができる。ただし、この場合、運転にともなって高速中性子スペクトルがあまり変化しないことが条件である。

第2の問題点として、原子炉内の γ 線による励起、すなわち $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')$

$^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の寄与について考える必要がある。この反応の断面積に関してはBogdankevichらの実験値⁴⁶⁾がある。その結果は図4-10のように約9MeVと20MeVに共鳴ピークのある構造をしている。断面積の大きさはこれらの共鳴ピークでも僅か4.5mb程度しかない。いま、簡単のために原子炉の中で、核分裂によって放出される高速中性子および γ 線のみがひきおこす $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応と $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の比をとると次のようになる：

$$\frac{\int_0^\infty \sigma_g(E) g(E) dE}{\nu \int_0^\infty \sigma(E) \phi_f(E) dE} = \frac{4.57 \times 10^{-29}}{1.35 \times 10^{-24}} = 3.4 \times 10^{-5} \quad (4.10)$$

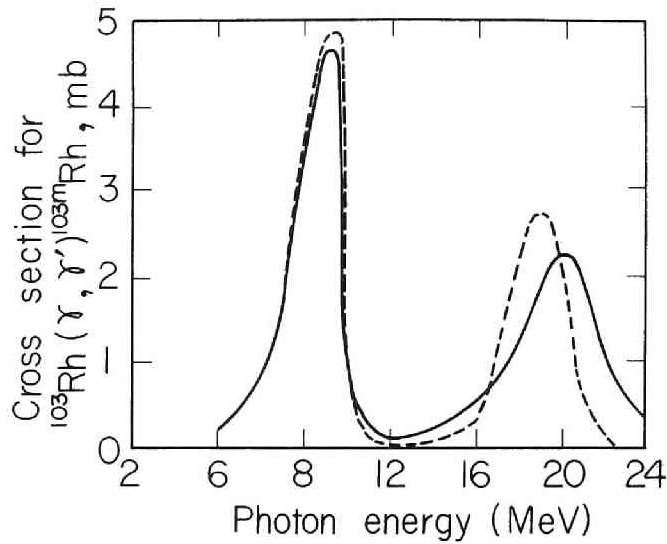


図 4-10 $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積 (Bogdankevich et al. ⁴⁶⁾) 実線と点線は 2 種類の異なった計算法による結果である

たゞし、ここで

ν : 1 回の核分裂で放出される高速中性子数の平均値、

$\phi_f(E)$: 核分裂中性子スペクトル、

$\sigma(E)$: $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積、本論文の値使用、

$\sigma_g(E)$: $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積、文献 (46) 参照、

$g(E)$: 核分裂で放出される γ 線のエネルギースペクトル、文献 (47) 参照。

この結果からみて、 $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の寄与は非常に小さいことが分る。たとえ、核分裂以外の γ 線によるものを考えても、この反応の比はあまり大きくならないものと考えられる。なお、Köhler らによれば、この寄与は約 0.1% といっている ⁴⁾。

$^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応を用いて測定した KUR の主要照射設備における高速中性子束の値を表 4-6 に示す。

表 4-6 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応によって求めた KUR 主要照射設備
の高速中性子束の値 (5,000kW 時)

照 射 設 備	高 速 中 性 子 束, $\Phi_f(E_{\text{eff}})^*$	高 速 中 性 子 束, Φ_f^{**}
水 圧 輸 送 管	$(2.3 \pm 0.1) \times 10^{13}$	3.9×10^{13}
圧 気 輸 送 管 (No.1)	$(1.85 \pm 0.19) \times 10^{12}$	3.2×10^{12}
圧 気 輸 送 管 (No.2)	$(3.40 \pm 0.30) \times 10^{12}$	6.0×10^{12}
圧 気 輸 送 管 (No.3)	$(2.75 \pm 0.22) \times 10^{12}$	4.8×10^{12}
傾 斜 照 射 孔	$(2.6 \pm 0.12) \times 10^{11}$	4.4×10^{11}

* $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の有効しきい値, $E_{\text{eff}} = 1.28\text{MeV}$ 以上のエネルギーを有する
中性子束 ($\text{n}/\text{cm}^2/\text{sec}$)

** 核分裂スペクトルとした全高速中性子束 ($\text{n}/\text{cm}^2/\text{sec}$) この値を KUR 照射設備高速中性子
束の公称値としている

第 5 節 結 言

しきい値の低いしきい反応として、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応をとりあげて
その反応断面積の測定を行なった。次に、高速中性子による照射損傷モニタの観点
から、この反応の意義を検討し、その有用性を示した。最後に、この反応を KUR
の主要照射設備の高速中性子束の測定に応用した。

本章で得られた知見を箇条書きすると次のとおりである：

(1) エネルギー依存の $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積の測定結果は Vogt and
Cross の値¹⁰⁾に近い結果となり、Butler and Santry の値¹³⁾より相当小さくな
った。これに関し未だ結論は出ていないが、Ribon²⁹⁾は本論文の値を推奨している。
Beckurts and Wirtz の値¹¹⁾は明らかに間違っている。

(2) 核分裂中性子スペクトルに対する平均断面積を求めると、平均断面積 $558 \pm$
 32mb 、実効しきいエネルギー 1.28MeV で実効断面積 $960 \pm 55\text{mb}$ となった。この
値は、第 V 章に示す核分裂板を用いて求めた値と非常によく一致した。また、その
他の 2、3 の報告の値^{6) 10) 14)}とも一致したが、Butler and Santry の値¹³⁾より
20%以上小さい。Ribon の推奨値 710mb ²⁹⁾はそのエネルギー依存断面積の推奨値と

矛盾する。

(3) 3種類の高速中性子スペクトル場における、鉄および炭素の照射損傷関数と $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ その他の反応の応答関数を比較した結果、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の応答関数は鉄および炭素の照射損傷関数に似た形状であることを示した。さらに、この関係を定量的に検討した結果、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応は照射損傷モニタとして優れていることが明らかになった。

(4) $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応による原子炉の高速中性子束測定上の問題点、とくに $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の影響を検討した結果、問題にならないことが分った。

(5) KURの主要照射設備の高速中性子束の値を $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応によって求めることができた。

(参 考 文 献)

- 1) 木村逸郎, 小林捷平, 柴田俊一: $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応を用いた高速中性子測定法の研究, KURRI-TR-42 (1967) .
- 2) 木村逸郎: $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応を用いた高速中性子の測定, 原子力学会炉中性子研究専門委報告, No. 8, 論文番号15 (1968) .
- 3) I. Kimura, K. Kobayashi and T. Shibata : J. Nucl. Sci. Technol., 6, 485 (1969) .
- 4) W. Köhler and K. Knopf : Nukleonik, 10, 181 (1967) .
- 5) A. Fabry : “*Possibilites et Limitations dans L'utilisation de Detecteurs a Seuil pour la Mesure des Doses Integrees de Neutrons Rapides*” Rapport d'avancement, EURATOM Groupe de travail Dosimétrie (1962) .

- 6) A. Fabry : "*Neutron Spectrometry in BR-2 Reactor by Means of Activation Threshold Detectors*", *Proc. International Conf. on Radiation Measurements in Nuclear Power*, p. 245, Institute of Physics and Physical Society, London, 1966. 但し、この報告書の中では、要旨のみしか印刷されていないので、Fabry がこの会議で配布した資料 (*unpublished*) を 参考にした。
- 7) C. M. Lederer et al. : *Table of Isotopes*, Sixth Edition p. 43. John Wiley and Sons, Inc., New York, 1967.
- 8) J. Brisbois et al. : "*Etude du Detecteur de Rhodium pour la Dosimetrie des Neutrons Rapides*", Note C. E. A. n° 410 (1962).
- 9) R. J. Trebilcock : "*Fast Flux Measurements in Zero-Energy Reactors*", *Proc. IAEA Symp. on Neutron Dosimetry*, Vol. 1 565 (1963).
- 10) E. W. Vogt and W. G. Cross : *unpublished, quoted in*, J. C. Roy et al. : "*Measurement of Fission Neutron Fluxes and Spectra with Threshold Detectors*", AECL-1994 (1964).
- 11) K. H. Beckurts and K. Wirtz : *Neutron Physics*, Springer-Verlag, Berlin, 1964.
- 12) M. A. Rothman et al. : *Phys. Rev.*, 107, 155 (1957).
- 13) J. P. Butler and D. C. Santry : "*The Neutron Inelastic Cross Section for the Production of ^{103m}Rh* ", *Proc. of Conf. on Neutron Cross Sections and Technology*, NBS Special Publication 299, Vol. 2, p. 803 (1968).

- 14) K. Kanda, H. Chatani and T. Shibata : Ann. Reports, Research Reactor Institute, Kyoto Univ., **4**, 94 (1971) .
- 15) L. Blumberg and S. I. Schlesinger : AECU-3118 (1958) .
- 16) J. L. Fowler and J. E. Brolley : Rev. Mod. Phys., **28** (2) 103 (1956) .
- 17) H. C. Martin et al. : Phys. Rev., **93**, 199 (1954) .
- 18) L. Heertje et al. : Physica, **30**, 775 (1964) .
- 19) B. Margolis : Phys. Rev. **93**, 204 (1954) .
- 20) A. B. Bresesti et al. : Nucl. Sci. Eng. **40**, 331 (1970) .
- 21) K. Kobayashi and I. Kimura : *to be published* .
- 22) K. Fährmann : "*Bestimmung schneller Neutronenspektren in Eisen mittels Schwellwertdetektoren*", ZfK-RN 27 (1964) .
- 23) W. L. Zijp : "*Review of Activation Methods for the Determination of Fast Neutron Spectra*", RCN-37 (1965) .
- 24) G. Berwanger : Atomkernenergie, **10**, 451 (1965) .
- 25) P. Delattre et al. : "*Accuracy Needed for Cross Section of Neutron Induced Threshold Reactions of Interest for In-Pile Integration and Spectrum Measurements*", EANDC (E) 51, "L" (1961) .
- 26) A. Fabry and J. P. Deworm : *Communication to the Euratom Working Group on Dosimetry* (1964) .

- 27) R. L. Simons and W. N. McElroy : "*Evaluated Reference Cross Section Library*", BNWL-1312 (1970) .
- 28) H. Gotoh : "*Response Function of Semiconductor Proton Recoil Counters*", JAERI-memo 3293 (1968) .
- 29) P. Ribon : "*Examen Critique des Donnees sur la Reaction $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103m}\text{Rh}$* ", DRP/MPNF/714/69 (1969) .
- 30) M. E. Rose : *Internal Conversion Coefficients* , North Holland, Amsterdam, 1958 .
- 31) A. M. Bresesti et al. : Nucl. Sci. Eng., 29, 7 (1967) .
- 32) K. H. Beckurts : *Private Communication* .
- 33) I. Kimura, K. Kobayashi and T. Shibata : EANDC (J) 8, p. 47 (1968) , 本論文及び文献(3)の以前に速報的に報告したもの .
- 34) W. F. Sheely : Nucl. Sci. Eng. , 29, 165 (1967) .
- 35) J. D. Jenkins : Trans. American Nucl. Soc., 12, 139 (1969) .
- 36) G. H. Kinchin and R. S. Pease : "*The Displacement of Atoms in Solids by Radiation*" in *Report on Progress in Physics* Vol. XVIII, pp. 1~51 (1955) .
- 37) A. D. Rossin : Trans. American Nucl. Soc., 6, 389 (1963) .
- 38) J. D. Jenkins : Nucl. Sci. Eng. 41, 155 (1970) .
- 39) A. D. Rossin : *ibid.* , 9, 137 (1961) .
- 40) D. R. Harries et al. : "*The Effects of Neutron Spectrum and*

Dose Rate on Radiation Hardening and Embrittlement in Steel,
AERE - R 4222 (1962) .

- 41) R. E. Dahl and H. H. Yoshikawa : Nucl. Sci. Eng., **17**, 398 (1963).
- 42) K. M. Barry and J. A. Corbett : Nucl. Tech., **11**, 120 (1971) .
- 43) R. E. Dahl and H. H. Yoshikawa : Nucl. Sci. Eng., **21**, 312 (1965).
- 44) W. N. McElroy and R. E. Dahl : Nucl. Appl. Tech., **7**, 561 (1969).
- 45) K. Kanda, T. Nanjyo, K. Kobayashi, Y. Nakagome and I. Kimura :
Ann. Reports, Research Reactor Institute, Kyoto Univ., **2**, 18 (1969) .
- 46) P. N. Bogdankevich et al. : Soviet Phys., JETP, **12**, 853 (1961) .
- 47) F. C. Maienschein, "*Prompt-Fission Gamma Rays*", in *Engineering Compendium on Radiation Shielding* (ed. R. G. Jaeger et al.),
Vol. 1, p. 76, Springer - Verlag, Berlin, 1968.

第Ⅴ章 標準高速中性子スペクトル場を用いた中性子 しきい反応平均断面積の測定^{1)～6)}

第1節 緒 言

高速中性子によるしきい反応断面積を正確に求めることは、原子炉の高速中性子の測定、高速中性子による照射損傷の評価、高速中性子による放射化分析やR Iの製造、原子炉の燃料サイクルの検討などのために極めて重要である。この場合、前章において述べたように中性子のエネルギーに依存したしきい反応断面積を求めることが望ましい。しかしながら、エネルギー依存断面積の測定には幾つかの困難が存在する。そのために系統的誤差が入り易く、測定結果の精度は一般にあまり良くないのが現状である。

このような中性子しきい反応のエネルギー依存断面積の値を積分的に評価するため標準的な高速中性子スペクトル場において下に定義するような平均断面積を求めることが提案されている⁷⁾。標準的な高速中性子スペクトル場としては核分裂中性子スペクトルの場が最も一般的である。

平均断面積 $\bar{\sigma}$ は次のように定義される⁷⁾。

$$\bar{\sigma} = \frac{\int_0^{\infty} \sigma(E) \phi_f(E) dE}{\int_0^{\infty} \phi_f(E) dE}, \quad (5.1)$$

ただし、ここで

E : 中性子エネルギー、

$\sigma(E)$: しきい反応のエネルギー依存断面積、

$\phi_f(E)$: 核分裂中性子スペクトル。

すでに第Ⅱ章および第Ⅲ章において示したように、京大原子炉、K U R 炉心内に

おける高速中性子のエネルギースペクトルは核分裂中性子に非常に近い。したがってこの K U R 炉心内を準核分裂中性子スペクトル場として、いくつかのしきい反応の平均断面積の測定を行ない、従来の値およびエネルギー依存断面積から (5. 1) 式を用いて計算した値との比較検討を行なうことができる。K U R 炉心内を、このような測定のための標準の高速中性子スペクトル場として用いる最大の利点は、高速中性子束が大きいことである。すなわち、K U R では、このような実験のときには冷却水を流すことができないので、その場合の最大出力は 100 kW に制限される。しかし、それでも炉心内の高速中性子束は約 10^{12} n/cm²/sec もある。これによって、小さな断面積のしきい反応に関する測定や試料が少ない場合の測定でも精度の高い結果を得ることができる。これに対し下に述べる核分裂板の高速中性子束は 10^8 n/cm²/sec 程度のため、測定対象が非常に限定される。

K U R 炉心内の高速中性子スペクトルは核分裂中性子スペクトルに非常に近いとはいえ、さらに正確を期するために、K U R 炉心内において求めたしきい反応断面積の値を、より純粋に近い核分裂中性子に対する平均断面積の値と比較して、両者が一致することを確認しておくことが望ましい。このために、K U R の重水熱中性子設備に設けた濃縮ウラン核分裂板から出る核分裂中性子を用いて測定したしきい反応断面積の値と比較する。

まず、チタンについては Zijp⁸⁾⁹⁾ が、これをしきい検出器として高速中性子束の測定に用いることを提唱して以来、2, 3 の使用例が報告されているが、未だ断面積データの精度は十分でない^{8)~15)}。そこで、これらの反応の平均断面積を求めてこれまでに測定された値と比較検討した。

次に、シリコンのしきい反応に注目した。これらは以下のような点から測定する意義がある。第Ⅲ章において述べたように、⁶Li サンドイッチカウンタで高速中性子スペクトルを測定するような場合、シリコンのしきい反応はバックグラウンドの大きな原因となる。したがって、こうした反応の断面積の値を知ることが⁶Li サンドイッチカウンタ使用上必要である。また、これらの反応はシリコン結晶に放射線損傷を与えるので、原子炉周辺や宇宙空間など高速中性子の存在する所でシリコンを使用した電子素子を使用する場合に、その寿命を求めるためにも、これらの反応

断面積の値が必要である。さらに、シリコンをしきい検出器として高速中性子束を測定するためにも断面積の値が必要であることはいうまでもない。しかしながら、これらのシリコンのしきい反応のうち $^{28}\text{Si}(n, \alpha)^{25}\text{Mg}$ および $^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$ 反応は生成核が安定なので、ここで用いた誘導放射能を測定する方法では求めることができなかった。

このほかいくつかの金属元素について、しきい反応平均断面積の測定を行なった。このうちのいくつかのものは、しきい検出器として使用の可能性があり、またいくつかは原子炉材料として使用されたさいの放射線損傷の検討という点から重要である。

次に、これらの測定されたしきい反応平均断面積を全体的に整理する。Roy and Hawton は (n, p) , (n, α) , $(n, 2n)$ 反応について、以下に定義する実効しきいエネルギー E_{eff} と $\bar{\sigma} / A^{2/3}$ の関係をプロットした¹⁶⁾。ここで A は質量数である。次に、実効しきいエネルギー E_{eff} と実効断面積 σ_0 は⁷⁾、

$$\int_0^{\infty} \sigma(E) \phi_f(E) dE = \sigma_0 \int_{E_{\text{eff}}}^{\infty} \phi_f(E) dE = \sigma_0 \Phi_f(E_{\text{eff}}). \quad (5.2)$$

ただし、ここで

$\Phi_f(E_{\text{eff}})$: 核分裂中性子のうち、エネルギーが E_{eff} より大きいものの割合。

もし、実効しきい断面積 σ_0 が核の表面積に比例するものとすれば、

$$\sigma_0 \propto 4\pi R^2 \propto A^{2/3} \quad (5.3)$$

であるから、 $\bar{\sigma} / A^{2/3}$ は $\Phi_f(E_{\text{eff}})$ に比例した形となるはずである。ただし、ここで、 R は核の半径である。

Roy and Hawton は 次のようなことを示した：

(1) (n, p) 反応の場合、 $\bar{\sigma} / A^{2/3}$ の勾配は $\Phi_f(E_{\text{eff}})$ より大きくなり、 A が偶数の組と奇数の場合と 2 つのグループに分れ、それぞれ 1 本の直線の上にいる。そしてこれらの 2 本の直線は同じ勾配をもち、平行である。(2) (n, α) 反応の場合は $E_{\text{eff}} < 9 \text{ MeV}$ において、 $\bar{\sigma} / A^{2/3}$ は $\Phi_f(E_{\text{eff}})$ にほぼ平行であるが、 $E_{\text{eff}} > 9$

MeV では、その勾配が大きくなる。この場合は、いずれも A の奇偶によらない。

(3) $(n, 2n)$ 反応の場合は、やはり A の奇偶によらず 1 本の線にのる。この勾配は $\Phi_f(E_{\text{eff}})$ の勾配より少し大きい。本研究においても、求めた平均断面積の値について、同様なプロットを行なって、Roy and Hawton の結果と比較検討する。

最近、しきい反応断面積の値を理論的に計算した報告がある。なかでも Pearlstein は多くの反応について計算を進めた¹⁷⁾。そこで、ここで求めた平均断面積の値を Pearlstein の求めた値とも比較する。

そもそも核分裂中性子スペクトルすなわち厳密には熱中性子による ^{235}U の核分裂即発中性子のエネルギースペクトルは、Watt によって求められたのち、いくつかのグループによって測定され実験式が示された^{18)~21)}。これらの間には僅かの相違は存在したものの、ほぼ一致した形状として長い間認められてきた。このうち Cranberg の示した式¹⁹⁾ はすでに第 II 章において使用した。ところが最近になってこれらの核分裂中性子スペクトルの形状に対し疑問がもたれ始めている^{22)~24)}。これは主としてしきい検出器によって核分裂中性子スペクトルを求めた場合に問題が生じたからである。例えば、McElroy がいくつかのしきい検出器を用い SAND-II コード²⁵⁾ によって解析した ^{235}U の核分裂中性子スペクトルを従来のものと比較すると図 5-1 のようになって、低エネルギー領域でかなり中性子束が低く、高エネルギー側で高くなって平均エネルギーとしては、従来値より約 20% 大きくなる。こうした問題が契機となって、さらにいくつかのグループが核分裂中性子スペクトルの形状について検討を行なっているが、このうち Bresesti らや Smith は従来の形に近いとしている^{26) 27)}。しかし、まだ問題があるので次のような検討を行なう。

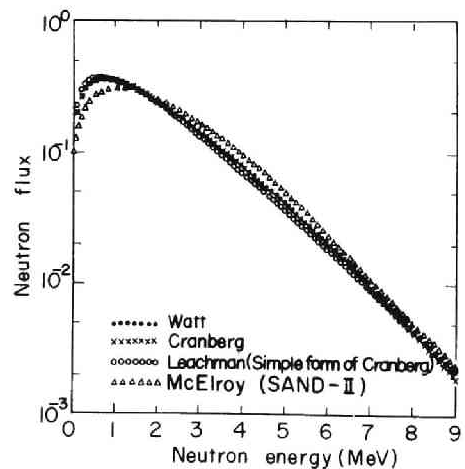


図 5-1 ^{235}U の核分裂中性子スペクトルに関する 4 つの表示

核分裂中性子スペクトルとして：(1) 従来の形として Leachman 型²⁰⁾、(2) 新しいものとして McElroy 型 (SAND-II 型)²⁴⁾ の 2 つを考える。このような核分裂中

中性子スペクトルとしきい反応のエネルギー依存断面積を用い(5.1)式によってしきい反応平均断面積を算出する。この値をKUR炉心内または核分裂板によって測定した平均断面積と比較検討することによって、核分裂中性子スペクトルの形状としていずれをとるべきかについて検討する。

第2節 実験の方法と誤差の評価

しきい反応箔はアルミ棒にとりつけて、KUR炉心内の燃料要素の中で照射した。この位置における高速中性子スペクトルは第II章において示したように核分裂中性子スペクトルに近い。照射は、炉出力1kWで30分間を標準とした。この場合高速中性子束は約 10^{10} n/cm²/sec となる。さらに必要に応じて出力を100kWまで上げて照射を行なった。

高速中性子束のモニタとして、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$ および $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応を利用した。これらのモニタ反応の平均断面積としては第II章において示したように、それぞれ 104mb, 1.4mb および 0.63mb という値を採用した。

次に、純粹な核分裂中性子による照射のために、KURの重水熱中性子設備に90%濃縮ウラン板を設置した。これは ^{235}U 、約1kgを UO_2 の形でアルミの中に分散させ、アルミで被覆した円板で、ウラン含有部の直径27.2cm、厚さ約1cmのものである²⁸⁾。この核分裂板上の高速中性子束は約 2×10^8 n/cm²/sec であった。この場合も $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$ および $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応によって高速中性子束をモニタした。

照射後のしきい反応箔の誘導放射能の測定は全面的にGe(Li)カウンタによった。その γ 線に対する光電ピーク効率はIAEA製標準線源によって較正した。Ge(Li)カウンタを採用したことによって、従来化学分離して測定することが必要とされていた反応についても、はっきりと γ 線を分離することができた。

測定結果に入る誤差として、次のものを考慮した：(1) 誘導放射能測定の計数値の統計誤差、(2) モニタによって求めた高速中性子束の誤差、(3) 系統的誤差。この

うち、統計誤差は光電ピーク計数値について、それぞれ重率を考えに入れて求めたものである。次に、中性子束の値は炉心内において3種類のモニタ反応で測定した値が2%以内で一致し、核分裂板では3%以内で一致したので、これらのばらつきを(2)の誤差とした。最後の系統的誤差として、Ge(Li)カウンタの動作状態、照射時間、待ち時間および計数時間の不正確さ、試料箔とモニタ箔の照射位置のずれ、照射中の中性子束の時間的变化、箔の計量の誤差などがある。

γ 線計数からくる誤差は、他のいずれよりも大きいと考えられる。そのうち、とくに問題になると考えられることは箔の位置とGe(Li)カウンタの光電ピーク効率の誤差である。前者の誤差の評価は難しいが、後者は1ないし数%と考えられる。何故ならば、この検出器は精度1%の標準線源を6種類使用して効率を校正しているからである。これらの標準線源の形状と試料箔の形状は完全に同一ではないが、ほぼ同じ大きさだったので、その違いによる効率の差は考慮していない。

照射時間、待ち時間および計数時間の不正確さからくる誤差は、生成核の半減期が短い $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ 反応以外は、誘導放射能の半減期が長いので殆んど問題にならない。次に、試料箔とモニタ箔の照射位置のずれについては、高速中性子束の勾配が殆んど0に近い場所を使用したので問題にならないと思われる。照射中の高速中性子束の変化はKURの炉心内では少いが、モニタ箔と試料箔とを同時に照射しているので、もし、多少の中性子束の変動が起っても通常あまり影響はない。試料箔は2台の天秤によって計量したが、この場合のばらつきは、0.01~0.1%の間にあった。

系統的誤差を正確に評価することは甚だ困難である。ここでは一応、5%という値をとった。これは、 $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ および $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ 反応断面積を数回独立に測定したさいの標準偏差から求めた値、3%に未知の量として2%加えて5%とした。この値は少し大きく見積りすぎているかも知れない。

本論文における最終的なしきい反応平均断面積の誤差は5.6%から15%の間になった。この値は従来の値と比べてあまり良いとはいえない。これは、系統的誤差として上述のように5%としたことが1つの原因となっている。

第3節 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ および $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$ 反応断面積の測定

チタン箔は米国 Reactor Experiments 社の製品を使用した。これは純度99.73%、直径12.7mm、厚さ 0.254mmの金属箔である。これをKUR 炉心内で炉出力 100 kWで照射した。照射後、誘導放射能を Ge(Li) カウンタによって測定した。γ線スペクトル測定例を、図5-2に示す。この図において、 ^{46}Sc の0.89および1.12 MeV, ^{47}Sc の 0.16 MeV および ^{48}Sc からの 0.98, 1.04, 1.314 MeVのγ線の光電ピークがはっきりと観測できる。そこで、これらのピークの計数の時間減衰を求めて、半減期をしらべると、いずれも従来の値とよく一致した。次に、Ge(Li) カウンタのγ線光電ピーク効率を用いることによって、おのこの反応についての平均断面積を求めた結果を表5-1～5-3に示す。なお、この表では核分裂板によって求めた平均断面積の値も示す。

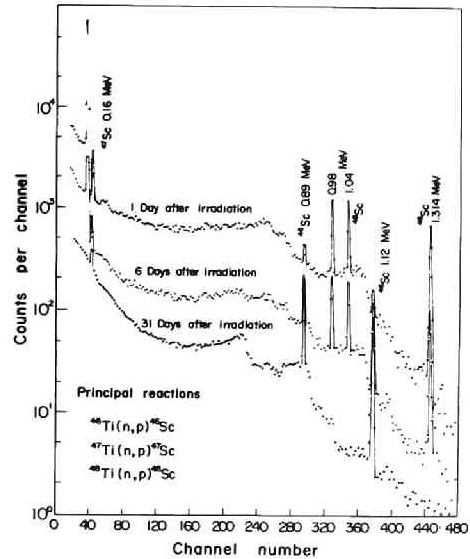


図5-2 KUR 炉心内で照射したチタン箔のγ線スペクトル

表5-1 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
11.2 ± 0.63	本 論 文 (KUR 炉心内)
10.8 ± 0.61	本 論 文 (核 分 裂 板)
8.2	Mellish ²⁹⁾ (原 子 炉)
8.0	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)
10	Durham ¹¹⁾ (原 子 炉)
11.1	Comera ¹²⁾ (原 子 炉)
17 ± 3	Niese ¹³⁾ (原 子 炉)
9.0 ± 0.1	Hogg ³⁰⁾ (原 子 炉)
12.8 ± 0.6	Boldeman ¹⁰⁾ (核 分 裂 板)
12.6 ± 0.4	Köhler ¹⁴⁾ (原 子 炉)
10.2 ± 0.4	Bresemi ³¹⁾ (核 分 裂 板)
11.3	Simons ³²⁾ (推 奨 値)
11.0	文献 (10), (11), (12), (14), (30), (31) の 平均 値

表 5-2 $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
19.0 ± 1.2	本 論 文 (KUR 炉心内)
17.3 ± 0.9	本 論 文 (核 分 裂 板)
0.42	Mellish ²⁹⁾ (原 子 炉)
18	Durham ¹¹⁾ (原 子 炉)
18 ± 3	Niese ¹³⁾ (原 子 炉)
15 ± 0.6	Hogg ³⁰⁾ (原 子 炉)
22 ± 1.5	Boldeman ¹⁰⁾ (核 分 裂 板)
13.2 ± 1.0	Köhler ¹⁴⁾ (原 子 炉)
17.2	Simons ³²⁾ (推 奨 値)
17.2	文 献 (10), (11), (13), (14), (30) の 平 均 値
24.9	Gonzales 他 ³⁷⁾ や Gotoh 他 ¹⁵⁾ のエネルギー依存断面積と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値

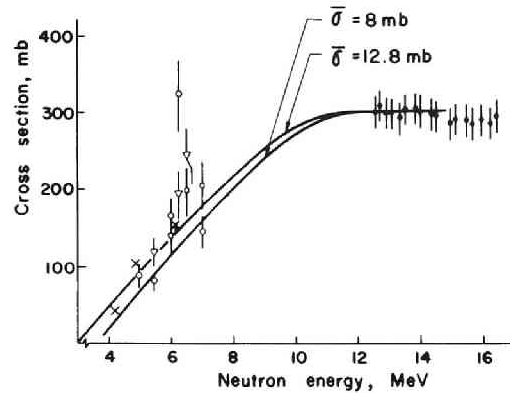
表 5-3 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
0.294 ± 0.025	本 論 文 (KUR 炉心内)
0.272 ± 0.052	本 論 文 (核 分 裂 板)
0.15	Mellish ²⁹⁾ (原 子 炉)
0.53	Durham ¹¹⁾ (原 子 炉)
0.44 ± 0.08	Niese ¹³⁾ (原 子 炉)
0.25 ± 0.01	Hogg ³⁰⁾ (原 子 炉)
0.21 ± 0.016	Boldeman ¹⁰⁾ (核 分 裂 板)
3.3 ± 0.2	Köhler ¹⁴⁾ (原 子 炉)
0.236	Simons ³²⁾ (推 奨 値)
0.31	文 献 (10), (11), (13), (29), (30) の 平 均 値

まず $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ 反応についてみると、炉心内と核分裂板とで平均断面積は誤差の範囲内で一致し、両者の平均をとると 11 mb となる。この値は従来の値の間に入っている。非常に古い値や Niese の値のように とくに大きく異なる値を外した平均値 (文献 (10), (11), (12), (14), (30), (31) の平均値)をとると 11 mb となって今回の値と一致する。この反応のエネルギー依存断面積は非常に乏しいが、最近 2、3 の報告がある^{33)~35)}。いまこれらの値を図 5-3 に示す。この図は、これらの実験値のほか、Francis らの計算値³⁶⁾ も示されており、ここで求められた平均断面積 11 mb になるように線を引くと、この 2 本の曲線の間に入ることになる。しかし、

図 5-3 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ 反応断面積
(Lukic and Carroll の図³⁴⁾ に
Ghorai et al. の値³⁵⁾を加えた)

▽ □ ○ : Lukic and Carroll³⁴⁾
● : Liskien and Paulsen³³⁾
× : Ghorai et al.³⁵⁾
— : Francis et al.³⁶⁾ (計算値)



今回の結果からエネルギー依存断面積を正確に評価することにはなお問題がある。一方、Simons and McElroy はいろいろなスペクトルの中性子場を組合せて使って求めた断面積を示しており、さらに、その値と Watt型核分裂スペクトル¹⁸⁾ を使って平均断面積を求めている³²⁾。その値は、表 5-1 に示すように 11.3mb となっており、本論文の結果に非常に近いことが注目される。

次に $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ 反応の結果は、炉心内と核分裂板とで平均断面積の値の一致はやや悪いが、一応誤差の範囲内で一致しており、両者の平均をとると、18.2 mb となる。Mellish 以外の平均値 (文献 (10), (11), (13), (14), (30) の平均値) をとると 17.2mb となり、Simons and McElroy の値³²⁾ と完全に一致した。今回の核分裂板で求めた値はこれに極めて近い。この反応のエネルギー依存断面積のデータも乏しいが Gonzales らの値³⁷⁾ と五藤氏と著者らが共同して求めた値¹⁵⁾ を使い、5 MeV から上は断面積が一定と仮定して平均断面積を求めると 24.9 mb となった。この値は、ここで求めた結果や従来の値より相当大きい。最近の Ghorai らの断面積³⁵⁾ は、五藤氏らの測定値よりさらに大きいので、平均断面積を出すと一層大きくなると考えられる。この大きな不一致の原因は今後究明されなくてはならない。

最後に、 $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$ 反応についてみると、炉心内と核分裂板の結果は誤差の範囲内で一致しており、両者の平均値は 0.283 mb となる。この場合、従来のデータ間の不一致がとくに著しいので平均をとることは適当ではないかも分らない

が、とくにはなれている Köhler の値を除いた平均値（文献 (10), (11), (13), (29), (30) の平均値）をとると 0.31 mb となり、今回の値に近くなる。従来の値の中で Köhler の値¹⁴⁾のみ異常に大きいとその理由は分らない。なお、この反応に関するエネルギー依存断面積データは殆んどないので検討できないが、Simons and McElroy の値³²⁾から求めた平均断面積は 0.236 mb となって少し小さい。

第4節 $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$, $^{29}\text{Si}(n, p)^{29}\text{Al}$ および $^{30}\text{Si}(n, \alpha)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の測定

シリコン箔は大きさ 8 mm × 8 mm × 0.2 mm (角形) のものを使用した。これは p 型シリコン単結晶の薄片である。誘導放射能の測定は Ge(Li) カウンタによった。γ線スペクトルの 1 例と ^{28}Al , ^{29}Al および ^{27}Mg の光電ピークの減衰曲線をそれぞれ図 5-4, 5-5 に示す。これらの光電ピークの計数値から求めた $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$, $^{29}\text{Si}(n, p)^{29}\text{Al}$ および $^{30}\text{Si}(n, \alpha)^{27}\text{Mg}$ 反応平均断面積の値を表 5-4 ~ 5-6 に示す。

シリコンに関するこれらの反応の平均断面積の測定例は極めて少ないが、今回の結果はそれらの従来の値と誤差の範囲内で一致している。また、これらの反応のエネルギー依存断面積も測定例は少いが、シリコン検

出器そのものを巧みに使うことによって、相当詳細な断面積の形状を求めた例がある³⁸⁾。この値を用いて $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ 反応の平均断面積を計算すると 9.0 mb となる。一方、少し古いデータであるが、放射化法でこの反応のエネルギー依存断面積を求めた結果³⁹⁾を用いて平均断面積を求めてみると 8.43 mb となった。し

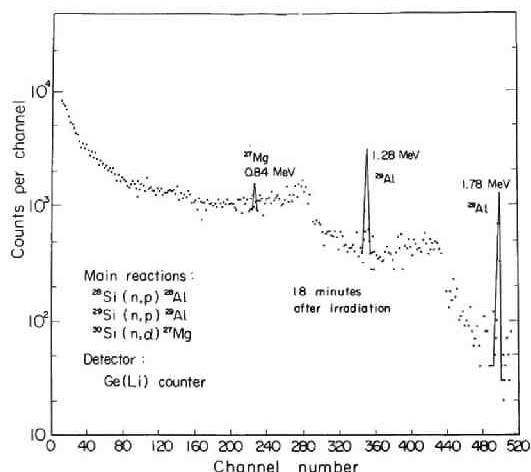


図 5-4 KUR 炉心内で照射したシリコンの
γ線スペクトル

たがって、これらの値はいずれも本論文の値 4.9mb より相当大きい。
このことに関しては今後さらに検討
することが必要であろう。

図 5-5 シリコンのしきい反応
生成核の放射能の時間
減衰

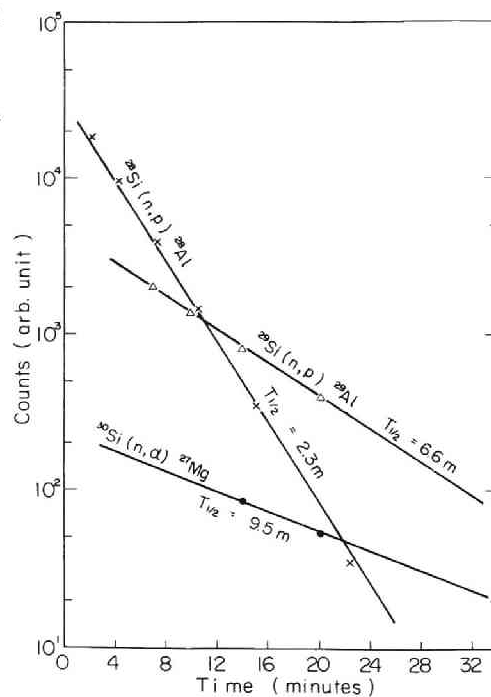


表 5-4 $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
4.90 ± 0.32	本 論 文 (KUR 炉心内)
4.0	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)
9.0	Mainsbridge 他のエネルギー依存断面積 ³⁸⁾ と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
8.43	Marion 他のエネルギー依存断面積 ³⁹⁾ と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値

表 5-5 $^{29}\text{Si}(n,p)^{29}\text{Al}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
2.98 ± 0.17	本 論 文 (KUR 炉心内)
2.7	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)

表 5-6 $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
0.130 ± 0.020	本 論 文 (KUR 炉心内)
0.150 ± 0.020	Niese ¹³⁾ (原 子 炉)

第5節 $^{51}\text{V}(n, \alpha)^{48}\text{Sc}$, $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$, $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$ および $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応断面積の測定

次にいくつかの原子炉材料金属元素のしきい反応の平均断面積を測定した。バナジウム試料としては純度 99.72%、直径 1.27cm、厚さ 0.076mmの箔を使用し、照射後の誘導放射能測定は $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$ 反応のさいと同じく ^{48}Sc からの γ 線を Ge(Li) カウンタによって測定した。その結果を表 5-7 に示す。現在まで

表 5-7 $^{51}\text{V}(n, \alpha)^{48}\text{Sc}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
0.0217 ± 0.0015	本 論 文 (KUR 炉心内)
0.08	Hughes ⁷⁾ (核 分 裂 板)
0.016	Saeland ⁴⁰⁾ (原 子 炉)
0.035	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)

に与えられたこの反応の断面積データは乏しい上に、その値どうしは一致していない。本論文ではより正確な値を得るために高速中性子束の高い位置で照射して統計誤差を軽減するとともに Ge(Li) カウンタを使用することにより誘導放射能測定を容易にした。

亜鉛の試料としては、純度 99.9%、直径 8mm、厚さ 0.2mmの箔を使用した。通常 $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$ 反応の測定のためには、照射後試料から銅を化学的に分離して、 $^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$ や $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ 反応などで生成した

^{65}Zn や $^{69\text{m}}\text{Zn}$ などの γ 線による妨害を避けるのが普通であるが、ここではこのような化学分離を行なうことなく測定するため Ge(Li) カウンタを使用した。

化学分離操作を省くことによって実験の再現性と信頼度が高まった。 γ 線スペクト

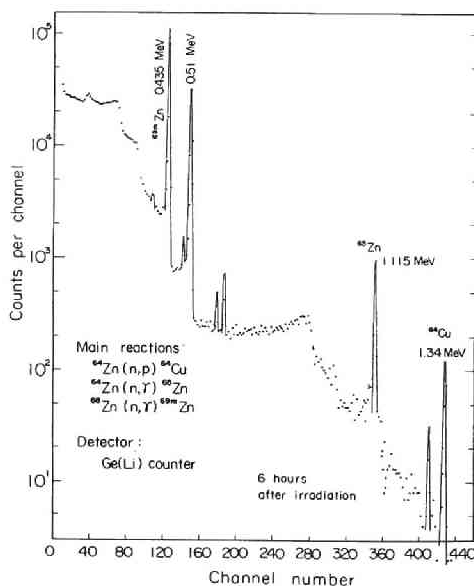


図 5-6 KUR 炉心内で照射した亜鉛の γ 線スペクトル

ルの測定例を図 5-6 に示す。ここで、 ^{64}Cu の γ 線 (1.34 MeV および消滅 γ 線 0.51 MeV) の光電ピークがはっきりと観測できる。なお、 ^{65}Zn や $^{69\text{m}}\text{Zn}$ のピークもはっきりと見える。その他のいくつかのピークは $^{71\text{m}}\text{Zn}$ によるものと考えられる。 $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$ 反応平均断面積の結果を表 5-8 に示す。この値は 1.34 MeV の γ 線の光電ピークから求めたものである。この表からみて、KUR 炉心内で求めた値と核分裂板で求めた値とは誤差の範囲内で一致し、その平均値は 36.5 mb となる。この場合も従来の実験値間の一致は良くないが、平均値 (文献 (10), (11), (16), (29), (41), (42) の平均) をとると 32.7 mb となり本研究の値より 10%

表 5-8 $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
35.5 ± 2.8	本 論 文 (KUR 炉心内)
37.4 ± 3.0	本 論 文 (核 分 裂 板)
44	Mellish ²⁹⁾ (原 子 炉)
39	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)
28	Passell ⁴¹⁾ (原 子 炉)
31	Durham ¹¹⁾ (原 子 炉)
27 ± 1.6	Boldemam ¹⁰⁾ (核 分 裂 板)
26.9 ± 1.2	Rau ⁴²⁾ (原 子 炉)
32.7	文献 (10), (11), (16), (29), (41), (42) の平均値
25.4	EUR-119e のエネルギー依存断面積と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
40.3	Butler and Santry のエネルギー依存断面積 ⁴⁶⁾ と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値

余り小さくなる。次に、この反応のエネルギー依存断面積についてみると、5 MeV 以下で 2、3 の報告^{43)~45)} の値がほぼ一致していたが、最近、Butler and Santry はこれらの値より約 50 % 大きい値を発表した⁴⁶⁾。Butler and Santry 以前の報告では 5 MeV ~ 12.5 MeV の間でデータがなく、12.5 MeV 以上では、いくつかの測定がある。そこで 5 MeV ~ 12.5 MeV の間で断面積の値を直線で結んで平均断面積の計算を行なってみた。その結果は 25.4 mb となり、Butler and Santry の報告の値から求めた場合は 40.3 mb となった。本研究の値は上記の 2 つの値の間にあり、Butler and Santry の値にやや近い。

次にモリブデンの試料としては、純度 99.92%、直径 1.27cm、厚さ 0.076 mm の箔を使用した。誘導放射能の測定には、やはり Ge(Li) カウンタを使用した。γ線スペクトルの例を図 5-7 に示す。これから $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応の平均断面積を求めると、表 5-9 のように KUR 炉心内および核分裂板とも 6 mb となった。従来発表されたこの反応の断面積のうち、Mellish の値²⁹⁾と Roy の値¹⁶⁾を除くとほぼ一致しており、それらの平均値 (文献 (10), (30), (31), (42) の平均) をとると、6.2mb となり、本研究の値とも誤差の範囲内で一致する。

最後にニオブ試料としては、純度 99.84%、直径 1.27cm、厚さ 0.127mm の箔を使用した。誘導放射能の測定は $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$ の場合と同じく $^{92\text{m}}\text{Nb}$ のγ線も Ge(Li) カウンタによって測定した。平均断面積の結果を表 5-10 に示す。この場合も、KUR 炉心内で求めた値と核分裂板によって求めた値は誤差の範囲内で一致した。本論文の結果は、

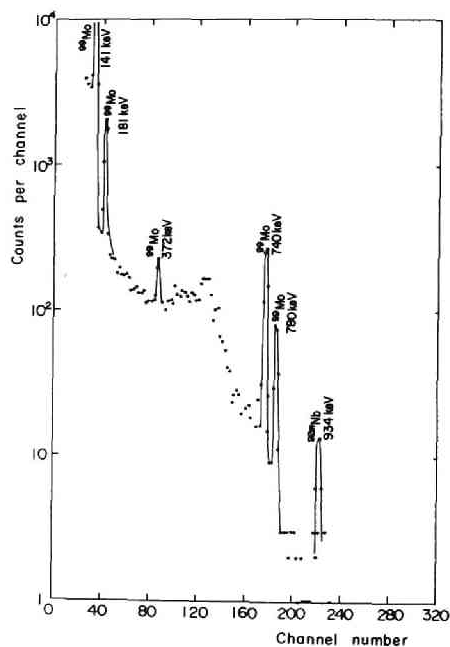


図 5-7 KUR 炉心内で照射したモリブデンのγ線スペクトル

表 5-9 $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
6.00 ± 0.43	本 論 文 (KUR 炉心内)
6.04 ± 0.45	本 論 文 (核 分 裂 板)
1.3	Mellish ²⁹⁾ (原 子 炉)
2.6	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)
6.0	Hogg ³⁰⁾ (原 子 炉)
6.2 ± 0.4	Boldeman ¹⁰⁾ (核 分 裂 板)
6.74 ± 0.27	Rau ⁴²⁾ (原 子 炉)
5.75 ± 0.25	Bresemi ³¹⁾ (核 分 裂 板)
6.2	文 献 (10), (30), (31), (42) の 平 均 値

Fabry の値⁴⁷⁾より相当大きい。この反応のエネルギー依存断面積の値として Tewes らの測定結果⁴⁸⁾があるので、それを使って平均断面積を計算すると、0.35 mb と

表 5-10 $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
0.432 ± 0.033	本 論 文 (KUR 炉心内)
0.402 ± 0.034	本 論 文 (核 分 裂 板)
0.33	Fabry ⁴⁷⁾ (原 子 炉)

なり、Fabry の値に近くなった。これらの値と本論文の結果との不一致について問題が残っている。

第 6 節 $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ および $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ 反応断面積の測定

鉛のしきい反応として $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ および $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ 反応について平均断面積を測定した。前者はしきい値が低く、後者は高いことからそれぞれ高速中性子束測定の上で特長がある。しかしながら ^{204}Pb は天然の鉛の中で僅か 1.4%しかないのが難点である。

鉛の試料としては大阪アサヒメタル(社)製の純度99.9%のものを使用した。その大きさは10mm×10mm×1mm(角形)のものであった。 $^{204\text{m}}\text{Pb}$ と ^{203}Pb の崩壊線図と主な γ 線は図 5-8 のようなものである。Ge(Li) カウンタによって、その γ 線を測定した結果を図 5-9 に示す。

$^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ 反応断面積をこの 0.375 MeV の γ 線から求めた場合と 0.899 および 0.912 MeV の 2 つの γ 線から求めた場合とを比較するとつねに前者が約10%ほど小さくなった。その原因はよく分らないが崩壊比などに誤差があるのかも知れない。ここでは一応両者の平均値をとった。結果を表 5-11 に示す。従来の測定例は少ないが、Durham

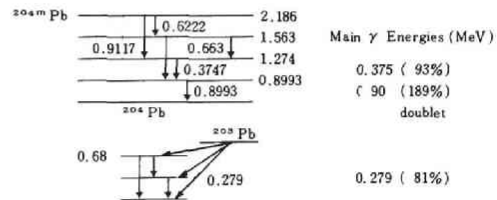


図 5-8 $^{204\text{m}}\text{Pb}$ および ^{203}Pb 崩壊線図

表 5-11 $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
18.9 ± 2.0	本 論 文 (KUR 炉心内)
22	Durham ¹¹⁾ (原 子 炉)
15.3 ± 0.7	Köhler ¹⁴⁾ (原 子 炉)
31.8	Heertje 他のエネルギ依存断面積 ⁴⁹⁾ と Leachman 型核分裂スペクトルを使って計算した値

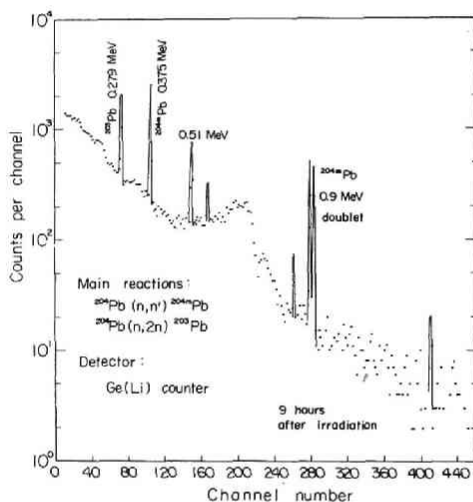
の値と Köhler の値の平均をとると 18.7 mb となって、今回の値とほぼ一致する。この反応のエネルギ依存断面積について Heertje らの測定がある⁴⁹⁾。そこで、この値を用いて、核分裂中性子に対する平均断面積を計算すると 31.8 mb となり本研究の結果より相当大きくなった。なお、最近、神田、茶谷氏らもこの反応の平均断面積の値を求めているが⁵⁰⁾、その結果は $15.7 \pm 0.3\text{mb}$ となり、今回の値よりかなり小さくて Köhler の値

に近い。この反応の断面積に関しては、なお今後検討すべき問題があるといえる。

次に $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ の断面積についてみると表 5-12 のように、本論文の結果は 従来の値より相当小さいのが注目される。しかし、最近の神田氏らの報告⁵¹⁾ ではさらに小さい値を出している。一方、この反応のエネルギ依存断面積データは乏しく、僅か 1 例の報告があるにすぎない⁵²⁾。

表 5-12 $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
1.90 ± 0.18	本 論 文 (KUR 炉心内)
3.3	Roy ¹⁶⁾ (推 奨 値)
5.0	Durham ¹¹⁾ (原 子 炉)
1.16 ± 0.16	Kanda ⁵¹⁾ (核 分 裂 板)

図 5-9 KUR 炉心内で照射した鉛の γ 線スペクトル

第7節 測定したしきい反応断面積の整理

上述のようにして測定されたしきい反応平均断面積の結果について、Roy and Hawton¹⁶⁾ に従い E_{eff} と $\bar{\sigma}/A^{2/3}$ の関係をプロットしてみると、図 5-10 のようになる。この結果からみて、今回の結果はすべて彼らの示した実験線に近いことが分る。なお、この図において、 E_{eff} の値は Roy and Hawton の表から引用した。

同様に、 (n, α) 反応についても Roy and Hawton のグラフにここで求めた値をプロットしてみた。その結果を図 5-11 に示す。この場合も今回の実験結果は、ほぼ彼らの示した線にのり、 $\Phi_f(E_{\text{eff}})$ からは外れることが分る。

また、 $(n, 2n)$ 反応についても同様のことが試みられているが、本研究の結果は非常に近接した2点になっていずれも Roy and Hawton の線に近くなった。これらをプロットした図は省略する。

以上のように、相当大きなばらつきがあるとはいえ、一応 (n, p) 、 (n, α) 、 $(n, 2n)$ 反応平均断面積に関し、Roy and Hawton の表示が成立つことを示すことができた。したがって、今後とも、こうしたしきい反応の断面積の予想を立てるのにこの関係が使用できるものと考えられる。

次に本論文によって得られたいくつかのしきい反応平均断面積を Pearlstein の

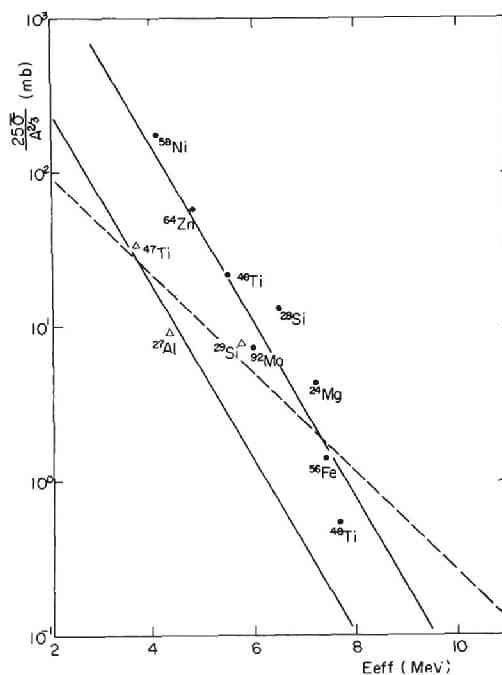


図 5-10 求められた (n, p) 反応に関する実効しきいエネルギーと $25\bar{\sigma}/A^{2/3}$ の関係
●：偶核，△：奇核
—：Roy and Hawton の求めた線¹⁶⁾
--：積分表示の核分裂中性子スペクトル

計算値^{17) 53)}と比較すると表5-13のようになった。この表において、 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ および $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$ 反応断面積の場合、両者はほぼ完全に一致しているが、その他の反応に関してみると、相当大きな相違がある。とくに $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ 反応の場合、不一致が著しい。しかしながら、この反応に関する Pearlstein の計算値は $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92}\text{Nb}$ と $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ の和を与えているためと考えられる。これ以外の反応では、最悪の場合で約 1.66 倍 ($^{51}\text{V}(n, \alpha)^{48}\text{Sc}$)、通常、数十% 以内で両者が一致することからして、Pearlstein の計算値もしきい反応断面積の予想を立てる上で十分役に立つことが結論できる。

図5-11 求められた (n, α) 反応に関する実効しきいエネルギーと $25\sigma/A^{2/3}$ の関係
 \triangle : 本研究の結果 (偶核奇核とも同じ)
 — : Roy and Hawton の求めた線¹⁶⁾
 - - : 積分表示の核分裂中性子スペクトル

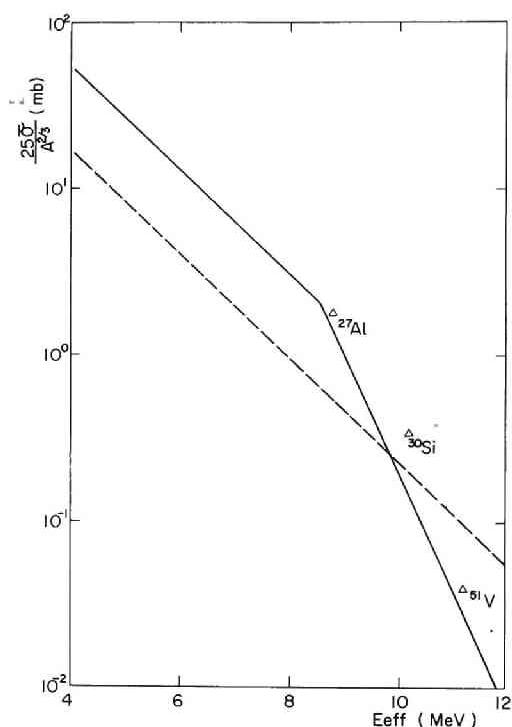


表5-13 しきい反応平均断面積測定結果と Pearlstein の計算値^{17) 53)}の比較

反 応	本 論 文 (mb)	Pearlstein (mb)
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	11.0	11
$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	18.2	29
$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	0.283	0.28
$^{51}\text{V}(n, \alpha)^{48}\text{Sc}$	0.0217	0.017
$^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$	36.5	22
$^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$	0.416	0.90*
$^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$	1.90	2.7

* Pearlstein の計算では $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92}\text{Nb}$ と $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ の和の値がでている

第 8 節 核分裂中性子スペクトルの検討

前述のように、核分裂中性子スペクトルの形状に問題があるので検討を加えた。核分裂板によって測定したしきい反応平均断面積の値とエネルギー依存断面積を核分裂中性子スペクトルを重率として積分して求めた平均断面積とを比較する。この場合、核分裂中性子スペクトルとして、Leachman 型²⁰⁾と McElroy 型²⁴⁾を用いた。

まず第 1 に $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応について検討した。核分裂板によってこの反応の平均断面積を測定した。測定は、第 IV 章および本章第 2 節に述べたとおりの方法によった。測定結果を表 5-14 にまとめた。これは、表 4-4 と多少

表 5-14 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
560 ± 7	本 論 文 (核 分 裂 板)
558 ± 32	本論文のエネルギー依存断面積(第 IV 章)と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
638	本論文のエネルギー依存断面積と McElroy 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
566 ± 17	Kanda et al. ⁵¹⁾
589	Fabry ⁴⁷⁾
535.8	Roy ⁵⁶⁾
1093	Beckurts and Wirtz ⁵⁵⁾
716 ± 40	Butler and Santry ⁵⁴⁾

重複するが、ここでは主として核分裂スペクトルの形状の検討に必要なものを掲げた。この表からみて、ここで求めた平均断面積および他の 3 つの報告の値はいずれも Leachman 型 核分裂中性子スペクトルを用いて計算した平均断面積の値によく合致した。これに反し、McElroy 型 核分裂スペクトルを用いて求めた値は、これらより 10% 以上大きくなった。しかしながら、Beckurts and Wirtz の値は、論外としても、Butler and Santry の値はここで得られた結果より相当大きい。この原因は明らかでないが、すでに第 IV 章でも述べたように彼らの中性子束モニタに何か問題があったのではないと思われる。

次に、 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応を用いて検討を行なった。やはり、核分裂板によってこの反応の平均断面積の測定を行なった。その結果は表 5-15 のように

表 5-15 $^{116}\text{In}(n, n')^{116\text{m}}\text{In}$ 反応平均断面積の比較

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
175 ± 2	本 論 文 (核 分 裂 板)
177 ± 10	本論文のエネルギー依存断面積 (第IV章) と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
212	本論文のエネルギー依存断面積と McElroy 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
174 ± 5.3	Kanda et al. ⁵¹⁾
177 ± 6.0	Bresesti et al. ²⁶⁾
179	Zijp ⁹⁾
171	Beckurts and Wirtz ⁵⁵⁾
170	Fährmann ⁵⁷⁾
179 ± 19	Fabry and Deworm ⁵⁸⁾
174	Simons and McElroy ³²⁾

なり、Leachman 型核分裂中性子スペクトルを用いて得られた平均断面積の値が、本研究の値はじめ他の7つの値とも誤差の範囲で一致したのに対し、McElroy 型核分裂中性子スペクトルを用いて得られた結果は大きくはずれることが分る。

表 5-16 $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ 反応平均断面積の比較 *

断 面 積 (mb)	参 考 文 献
3.4 ± 0.1	本 論 文 (核 分 裂 板)
3.34	EUR-119e のエネルギー依存断面積と Leachman 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
4.48	EUR-119e のエネルギー依存断面積と McElroy 型 核分裂スペクトルを使って計算した値
3.5	Beckurts and Wirtz ⁵⁵⁾
3.4 ± 0.38	Alexander ⁶⁰⁾
2.9 ± 0.5	Boldeman ¹⁰⁾
3.83	Brownell ⁶¹⁾
3.5 ± 0.2	Beaugé ⁶²⁾
3.43	上の5つの平均

*この反応に関する核データ等は 表 2-9 参照

第3に $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ 反応について調べた。やはり、核分裂板によってこの反応の平均断面積を求めたところ $3.4 \pm 0.1\text{mb}$ となった。この結果を他の測定値や計算値と比べたものを表 5-16 に示す。ここではエネルギー依存断面積として Liskien and Paulsen の図表⁵⁹⁾の値をとっている。平均断面積の測定値は相

当ばらつきがあるが、それらの平均をとると本論文の結果に近くなり、Leachman 型核分裂中性子スペクトルを使って計算した値に近くなることが分る。

同様の結果は、 $^{232}\text{Th}(n, f)$, $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ ^{231}Th , $^{231}\text{Pa}(n, f)$, $^{237}\text{Np}(n, f)$ 反応の場合についても得られている^{2) 4) 5) 6) 63) 64)}。

以上のように、しきい値が相異なる数種類のしきい反応について核分裂中性子スペクトルの形状の検討を行なった結果、すべての場合とも Leachman 型の核分裂中性子スペクトルの方がより良い平均断面積を与えることが明らかになった。これに反し、McElroy 型の核分裂中性子スペクトルを使って平均断面積を計算すると、10～20%も大きい値になる。

しかしながら、この測定を通じて、高速中性子束モニタとして用いた3種類の反応、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$ および $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応の平均断面積の値を求めるさいに、Leachman型核分裂中性子スペクトルを重率として使用していることが問題である。そこで、もしこれらの反応の平均断面積を求めるさいに McElroy 型核分裂中性子スペクトルを用いると、各々の平均断面積の値がそれぞれ 35%、20% および 18%大きくなり、まずこれらのモニタによって求めた高速中性子束の間で不一致が起ってくる。このことは核分裂中性子の形状が、Leachman型であるということに対する十分条件ではないが McElroy 型ではないということに対しては十分条件といえる。今後、この点についてさらに検討が必要であるが、本論文の結果からすると、Leachman型の方が妥当である。最近の報告^{26) 27) 65)}でも、従来の形状の核分裂中性子スペクトルを支持するものが多いが、McElroy らはこれを否定している⁶⁶⁾。したがって、なお 今後に問題が残されている。

第9節 結 言

KUR 炉心内と核分裂板を使用して、いくつかのしきい反応平均断面積の値を得ることができた。そして、その結果をもとに2、3の点について検討を加えた。

本章で得られた知見を簡条書きにすると次のとおりである：

- (1) $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$, $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$, $^{28}\text{Si}(n, p)$

^{28}Al , $^{29}\text{Si}(n, p)^{29}\text{Al}$, $^{30}\text{Si}(n, \alpha)^{27}\text{Mg}$, $^{51}\text{V}(n, \alpha)^{48}\text{Sc}$, $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$, $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92\text{m}}\text{Nb}$, $^{93}\text{Nb}(n, 2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$, $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ および $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ 反応の断面積を、精度 5.6%~15%で求めることができた。その結果は、従来の値やエネルギー依存断面積から求めた値と一致するものが多かったが、2、3問題があるものもあった。

(2) KUR 炉心内と核分裂板とで同じ反応の平均断面積を求めると、両者はすべて実験誤差の範囲内で一致した。このことは第Ⅱ章および第Ⅲ章において示したように、KUR 炉心内の高速中性子スペクトルが核分裂中性子に近いことを裏書きするものである。

(3) (n, p) , (n, α) , $(n, 2n)$ 反応ごとに、実効しきいエネルギー E_{eff} を横軸にとり、平均断面積を核の幾何学的表面積で割ったもの $\bar{\sigma}/A^{2/3}$ を縦軸にとってプロットすると Roy and Hawton の示した関係にほぼ合った。一方、Pearlstein の計算値との比較を行なった結果、2、3のものは極めて良く一致し、他のものも数十%以内で一致することが分った。

(4) 核分裂中性子スペクトルの形状に関し、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$, $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$, $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ 反応等によって検討した。その結果、Leachman型など、いわゆる従来から提唱されている核分裂中性子スペクトルの方が、McElroy らが最近発表している硬いスペクトルより適当であるという結果が得られた。

(5) 誘導放射能測定に全面的に Ge(Li) カウンタを用いることによって、目的とする核種の同定とその定量的測定が容易になった。これによって、従来、化学的分離が必要とされていた核種についてもそのまま測定することができた。

(参 考 文 献)

- 1) 木村逸郎、小林捷平、柴田俊一：しきい検出器による高速中性子スペクトル測定 (2), KURRI—TR—61 (1969).
- 2) K. Kobayashi and I. Kimura : Ann. Reports, Research Reactor Institute, Kyoto Univ., 3, 84 (1970) .
- 3) I. Kimura, K. Kobayashi and T. Shibata : J. Nucl. Sci. Technol., 8, 59 (1971).
- 4) K. Kobayashi, T. Hashimoto and I. Kimura : *ibid.*, 8, 492 (1971).
- 5) I. Kimura, K. Kobayashi and T. Shibata : “*Integral Check of Fission Neutron Spectrum through Average Cross Sections for Some Threshold Reactions,*” Paper Presented at IAEA Specialist Meeting on the Status of Prompt Fission Neutron Spectra held in Vienna, August, 1971, *to be published*.
- 6) 木村逸郎、小林捷平、柴田俊一：京大原子炉実験所第六回学術講演会講演要旨集、p. 33 (1972).
- 7) D. J. Hughes : *Pile Neutron Research*, Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Cambridge, 1953 .
- 8) W. L. Zijp : *Proc. IAEA Symp. Neutron Dosimetry*, Vol. 1, p. 589 (1963).
- 9) W. L. Zijp : “*Review of Activation Methods for the Determination of Fast Neutron Spectra,*” RCN—37 (1965).
- 10) S. W. Boldeman : J. Nucl. Energy, 18, 417 (1964).
- 11) R. W. Durham et al. : “*Threshold Reaction Interference in Neutron Activation Analysis,*” AECL—1434 (1962).
- 12) J. Comera : Interner CEA—Rep., DPE—SPE, Note E—87 (1963).
- 13) S. Niese et al. : Kernenergie, 6, 37 (1963).
- 14) W. Köhler : Nukleonik, 8, 9 (1966).

- 15) 五藤 博、八木秀之、木村逸郎、小林捷平、 $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ の断面積の測定、昭和46年原子力学会年会要旨集、E 11 (1971).
- 16) J. C. Roy and J. J. Hawton : “*Table of Estimated Cross Sections for (n, p) , (n, α) and $(n, 2n)$ Reactions in a Fission Neutron Spectrum,*” AECL-1181 (1960).
- 17) S. Pearlstein : “*Neutron Induced Reactions in Medium Mass Nuclei,*” BNL-16271 (1971).
- 18) B. E. Watt : Phys. Rev., **87**, 1037 (1952).
- 19) L. Cranberg et al. : *ibid.* , **103**, 662 (1956).
- 20) R. B. Leachman : *Proc. Second Intern. Conf. on Peaceful Uses of At. Energy*, Vol. 15, p. 229, United Nations, New York, 1958 .
- 21) E. Barnard et al. : Nucl. Phys., **71**, 228 (1965).
- 22) A. Fabry : Nukleonik, **10**, 280 (1967).
- 23) J. A. Grundl : Nucl. Sci. Eng., **31**, 191 (1968).
- 24) W. N. McElroy : *ibid.*, **36**, 109 (1969).
- 25) W. N. McElroy et al. : *ibid.*, **36**, 15 (1969).
- 26) A. M. Bresesti et al. : *ibid.*, **40**, 331 (1970).
- 27) A. B. Smith : *ibid.*, **44**, 439 (1971).
- 28) 神田啓治 他 : 中性子エネルギーコンバータ, KURRI-TR-96 (1972).
- 29) C. E. Mellish et al. : “*Flux and Cross Section Measurements with Fast Fission Neutrons in BEPO and DIDO*”, AERE I/R 2630 (1958).
- 30) C. H. Hogg and L. D. Weber : “*Fast Neutron Dosimetry at the MTR-ETR Site*”, ASTM Special Technical Publication, No. 341 (1963).
- 31) A. M. Bresesti et al. : Nucl. Sci. Eng., **29**, 7 (1967).
- 32) R. L. Simons and W. N. McElroy : “*Evaluated Reference Cross Section Library*”, BNWL-1312 (1970).
- 33) H. P. Liskien and A. Paulsen : Nucl. Phys., **63**, 393 (1965).

- 34) Y. Lukic and E. E. Carroll : Nucl. Sci. Eng. **43**, 233 (1971).
- 35) S. K. Ghorai et al. : J. Nucl. Energy **25**, 319 (1971).
- 36) N. C. Francis et al. : *Proc. IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors*, Vol. 2, p. 267 (1966).
- 37) L. Gonzales et al. : Phys. Rev., **126**, 271 (1962).
- 38) B. Mainsbridge et al. : Nucl. Phys., **48**, 83 (1963).
- 39) J. B. Marion et al. : Phys. Rev., **101**, 247 (1956).
- 40) E. Saeland et al. : “*Yields for Pile Neutrons in Elements in Medium and Higher Atomic Numbers*”, Jener Report 23 (1954).
- 41) T. O. Passell and R. L. Heath : Nucl. Sci. Eng., **10**, 308 (1961).
- 42) G. Rau : Nukleonik, **9**, 228 (1967).
- 43) J. Rapaport and J. J. van Loef : Phys. Rev., **114**, 565 (1959).
- 44) J. J. van Loef : Nucl. Phys., **24**, 340 (1961).
- 45) K. Nakai, H. Gotoh and H. Amano : J. Phys. Soc. Japan, **17**, 1215 (1962).
- 46) J. P. Butler and D. C. Santry. *Fast Neutron Cross Sections* : EANDC—CAN—34 (L) (1968).
- 47) A. Fabry : *Proc. Conf. Radiation Measurements in Nucl. Power*, Berkeley, p.245 (1966).
- 48) H. A. Tewes et al. : *Private Communication, Quoted in BNL—325*, Second edition, Supplement No. 2, Vol. II B, Z=41 to 60 (1966).
- 49) I. Heertje et al. : Physica, **30**, 1609 (1964).
- 50) 茶谷 浩、神田啓治：昭和46年炉物理炉工学分科会予稿集 D—11（口頭発表時修正された値）（1971）。
- 51) K. Kanda, H. Chatani and T. Shibata : Ann. Reports, Research. Reactor Institute, Kyoto Univ., **4**, 94 (1971)
- 52) I. Heertje et al. : Physica, **30**, 1762 (1964).
- 53) S. Pearlstein : Nucl. Sci. Eng., **23**, 238 (1965).

- 54) J. P. Butler and D. C. Santry : "*The Neutron Inelastic Cross Section for the Production of ^{103m}Rh* ", *Proc. of Conf. on Neutron Cross Sections and Technology*, NBS Special Publication 299, Vol. 2, p. 803 (1968).
- 55) K. H. Beckurts and K. Wirtz : *Neutron Physics*, Springer-Verlag, Berlin, (1964).
- 56) E. W. Vogt and W. G. Cross : *Unpublished and Quoted in*, J. C. Roy et al. : AECL-1994 (1964).
- 57) K. Fährmann : "*Bestimmung Schneller Neutronenspektren in Eisen mittels Schwellwertdetektoren*", ZfK—RN 27 (1964).
- 58) A. Fabry and J. P. Deworm : "*Communication to the Euratom Working Group on Dosimetry*" (1964).
- 59) H. Liskien and A. Paulsen : "*Compilation of Cross Sections for Some Neutron Induced Threshold Reactions*", EUR 119e (1963).
- 60) K. F. Alexander : "*Some Neutron Cross Sections Measured at the Rosendorf Research Reactor*", ZfK—RN—23 (1964).
- 61) G. L. Brownell et al. : "*Neutron Spectroscopy and Dosimetry at the Medical Therapy Facility of the MITR*", *Proc. IAEA Symp. on Neutron Dosimetry*, Vol. 1, p. 51 (1963).
- 62) R. Beaugé : "*Dosimétrie des neutrons*", *ibid.*, Vol. 2, p. 3.
- 63) 小林捷平、橋本哲夫、木村逸郎：放射化法による ^{231}Pa の中性子断面積測定、昭和46年原子力学会年会要旨集、E—12 (1971)。
- 64) 小林捷平、木村逸郎、柴田俊一：“Np の核分裂平均断面積の測定”、昭和46年原子力学会炉物理炉工学分科会予稿集、D—10 (1971)。
- 65) H. Berle and H. Bluhm : "*Prompt Fission Neutron Spectra Measurements of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{252}Cf* ", Paper Presented at the 14th EACRP Meeting (*unpublished*) (1971).
- 66) W. N. McElroy et al. : *Nucl. Sci. Eng.*, **48**, 51 (1972).

第Ⅵ章 総括的討論および結論

第1節 総括的討論

まず第1に、原子炉の高速中性子スペクトル測定法に関する基礎的研究として、しきい検出器を用いる方法と ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタを用いる方法とを確立した。すなわち、まずこれらの方法に関する諸特性を求め、いくつかの知見を得た。次に、実際の研究用原子炉、KURにおける高速中性子スペクトルの測定にこれらの方法を応用した。その結果は、計算値や他の測定法による測定結果と一致した。本論文において取扱った原子炉の高速中性子スペクトル測定法について、主な性能、得られた知見および応用して得られた成果を表6-1にまとめる。この表においては、比較のために他の高速中性子スペクトル測定法の性能についても列挙した。

表6-1 原子炉の高速中性子スペクトル測定法の比較

方 法	分 解 能	感 度	γ 感 度	コリメーション	本研究で明らかにしたこと	これらを用いて得られた成果
しきい検出器 (陽ラゲール線数増強法)	一般に良くなく、中性子スペクトルの急激な変化に、例えば谷や山を再現することは困難である。この点からいえば断面線増強法の方が良さそうである。	あまり良くない。解析の点からして、高速中性子束が $10^{10}/\text{cm}^2/\text{sec}$ 程度以上であると案である。	一部の (n, n') 反応以外、中性子感である。	不	①核分裂中性子スペクトルやこれに少し変化したスペクトルの場合、陽ラゲール線数増強法が7種類の反応を使用)が最も優れている。 ②しきい値が測定エネルギーの中間部にあるしきい反応の反応率に敏感であるとスペクトル算定に対する影響が大きい。 ③1つの反応の反応率に敏感である場合、RDMMを意味した陽ラゲール線数増強法が良い。	①研究炉(KUR)の炉心内および実験孔流出中性子スペクトルを測定し、この結果を他の方法による測定値や計算値と比べて一致をえた。 ②KUR炉心内が核分裂中性子スペクトルに似た標準中性子スペクトル場として使えることを提案。
^6Li サンドイッチカウンタ (Si検出器しゃへい方式)	^6LiF の厚さで決る。2 MeVの中性子の場合、 ^6LiF の厚さを $(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ で表わしたときの数値に(k.eV)をつけた値が半値巾の概略値となる。ただし、 ^6LiF が検出に感くるとシリコン検出器や回路の雑音で分解能が決る。	これも ^6LiF の厚さ、シリコン検出器の大きさや回路で決る。本研究のものでは 10^{-7} ~ 10^{-8} と低い。密着型でも 10^{-7} ~ 10^{-8} 、いずれも実測は困難である。	いわゆるパイルアップ現象によって分解能が劣化する。シリコン検出器をしゃへいするとよい。	本研究のようなカウンタでは必要。密着型では必要。	①厚さ $150\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の ^6LiF で半値巾約240keV。 ②強いγ線によって分解能が低下する。 ③バックグラウンドは ^6Li を ^6Li におきかえて求める。2~4 MeVで十数%。 ④厚い ^6LiF 層での分解能の実測値は計算値と合う。 ⑤高速中性子エネルギーと出力パルス速度との比例性は良好。	①研究炉(KUR)実験孔流出中性子スペクトルを測定し、この結果を他の方法による測定値や計算値と比べて一致をえた。 ②KUR炉心内が核分裂中性子スペクトルに似た標準中性子スペクトル場として使えることを提案。
^3He サンドイッチカウンタ (Si検出器しゃへい方式)	^3He ガス圧によるが一般に ^6Li サンドイッチカウンタより遥かに分解能が良(50keV以下)にできる。しかしγ線パイルアップがあると分解能が劣化する。	^3He ガス圧、シリコン検出器の大きさと回路で決るが一般に ^6Li カウンタより数倍は1けた以上大きくできる。ただし、あまり ^3He ガス圧を上げるとかえって効率が下る。	Q値が低いのでγ線の影響を非常に受け易いのが欠点である。	本研究のようなカウンタでは必要。密着型では必要。	① ^3He ガス圧0.25kg/cm ² で半値巾約40keV。 ②γ線パイルアップが極めて大きい。 ③バックグラウンドは ^3He ガスを用いて求める。その値は低い。 ④ ^3He ガス圧を上げてゆくと、トリトンパイルアップの吸収によって効率が落ちて下る。 ⑤高速中性子エネルギーと出力パルス速度との比例性は良好。	①研究炉(KUR)実験孔流出中性子スペクトルを測定し、この結果を他の方法による測定値や計算値と比べて一致をえた。
原子核検板	約100~数百keV	10^{-7} ~ 10^{-8}	α線量を数R以下に抑えることが必要。	一般に必要。場合によっては方向依存スペクトルが測定できる。		①しきい検出器、 ^6LiF / ^3He サンドイッチカウンタの補助的方法として採用し、これらの方法による結果と一致した。
飛行時間分析 (電子線型加速装置 シンチレータ 20m飛行室)	主として飛行距離、パルス巾、中性子検出器や回路の応答によるが、著者の場合2 MeVで約50keV	飛行距離、コリメータの配置、検出器の大きさなどによるが著者の場合約 5×10^{-9}	いろいろな方法によって排除できる。	必	要	
(シンチレータ) (シンチレータ)	Unfoldingの手法によるが、一般に10~30%といわれる。	シンチレータの大きさによるが一般に0.1~0.4と大きい。	γ線量率が低いと波形弁別できる。	不	要	
反跳電子検出 コープ	10~20%	10^{-7} ~ 10^{-8}	低い。	必	要	
反跳電子及び ^3He 比例計数	5~20%	10^{-7} ~ 10^{-8}	γ線量率が低いと波形弁別できる。	不	要	

まず、他の高速中性子スペクトル測定法のうち、飛行時間分析法^{1)~4)}は、一般にエネルギー分解能の点でしきい検出器や ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタより遥かに優れており、また使用できるエネルギー範囲は極めて広い。しかしながら、実際の原子炉の高速中性子スペクトルにこの方法を使用することはできない。

また一方、表6-1の下に3段に挙げた高速中性子スペクトロメータ（有機シンチレータまたは液体シンチレータ、反跳陽子テレスコープおよび反跳陽子または ^3He 比例計数管）⁵⁾は最近よく用いられている。これらは、臨界集合体やしゃへい層透過中性子スペクトルの測定には有効であるが、強い γ 線の存在する場では使用不能となるために、実際の原子炉の高速中性子スペクトル測定には向かない。

したがって、本論文において取扱った2つの方法は、実際の原子炉の高速中性子スペクトル測定のために今後とも大いに使用されるものと考えられる。その場合、ここで明らかにした知見が少なからず有用となろう。なお、しきい検出器を用いた高速中性子スペクトル測定法を今後さらに改良し誤差を減少するためには、使用するしきい反応断面積の値の精度を向上させることが必要である。また、より低いエネルギー領域の高速中性子スペクトルまで求めうるような方法についても検討することが望ましい。次に、 ^6Li および ^3He サンドイッチカウンタによる高速中性子スペクトル測定法に関し、今後さらに検討すべき点としては、エネルギー分解能をさらに改善して、やはりより低いエネルギー領域の高速中性子スペクトルまで求めることである。このためには、 ^6Li よりも ^3He サンドイッチカウンタの方が有望のように思われるがこの場合、 γ 線のパイルアップの影響が極めて大きいことが問題である。これを解決する方法について今後検討したい。

第2には、標準高速中性子スペクトル場の確立とその応用としてのしきい反応平均断面積の測定についてまとめる。まず、標準高速中性子スペクトル場の確立に関し、次のような研究を行なった。すなわち、上述のしきい検出器および ^6Li サンドイッチカウンタを用いた高速中性子スペクトル測定法を応用することによって、京大原子炉、KUR炉心内の高速中性子スペクトルが核分裂中性子スペクトルに近いことを示した。これにより、この場所が、1つの標準高速中性子スペクトル場として使えることを明らかにした。標準高速中性子スペクトル場としてのKUR炉心内を

表 6-2 標準高速中性子場の比較

方 法	中 性 子 ス ペ ク ト ル	中 性 子 束	特 徴
K U R 炉 心 内	1MeV以上において核分裂中性子スペクトルに近い	$\sim 10^{12}$ n/cm ² /sec (100kW)	① 高速中性子束が大きいので、小さな断面積のしきい反応でも、測定にかゝる。 ② 1 MeV以下では核分裂スペクトルから外れるので注意がいる。 ③ 熱中性子束およびγ線量率が高い。
K U R E-3 実 験 孔	1MeV以上において核分裂中性子スペクトルに近い。 (直接燃料要素を見る配置)	$\sim 10^8$ n/cm ² /sec (5 MW)	① ビーム状中性子である。 ② 1 MeV以下では核分裂スペクトルから外れるので注意がいる。 ③ 熱中性子束およびγ線量率が高い。
核 分 裂 板 (KUR 重水設備)	核分裂中性子スペクトル	$\sim 10^8$ n/cm ² /sec (5 MW)	① 核分裂中性子スペクトル場として最良である。 ② 熱中性子束およびγ線量率が高い。
バン デ グ ラ フ 器	T (p, n) ³ He	300keV ~ 1 MeV	① 単色中性子。 ② γ線は少ない。
	D (d, n) ³ He	2 MeV ~ 5 MeV	① 単色中性子。 ② γ線は少ない。
ΣΣ 設 備 ⁶⁾ (Fabry, BR 1)	核分裂中性子スペクトルに近い	6×10^8 n/cm ² /sec (BR 1 : 1 MW)	① 天然ウラン球殻を用いた標準場であり、壁から反射してくる成分を巧みに分離している。
核 分 裂 板 ⁷⁾ (Grundl)	核分裂中性子スペクトルに近い	$\sim 1 \times 10^{11}$ n/cm ² /sec (NBS Reactor)	① 熱中性子設備内の直径12インチの球形空洞内にセットしたもの。 ② 散乱中性子が多いと思われる。

*2 MeV程度の変圧器(ビーム電流 $2 \mu A$)の場合

他のものと比較すると表 6-2 のようになる。この表からも分るように、KUR 炉心内は、エネルギーが比較的低い高速中性子領域 ($< 1 \text{ MeV}$) において、核分裂中性子スペクトルから外れ、 $1/E$ 領域の中性子や熱中性子を随伴していることが欠点であろう。またγ線量率も非常に高い。しかし、原子炉の出力が100kWにおいて、 $10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ という大きな高速中性子束が得られることが特長である。この高速中性子束の値を、核分裂板や実験孔 (E-3) と比べると 10^4 も大きい。また、外国の標準高速中性子スペクトル場、例えば、FabryのΣΣ設備⁶⁾やGrundlの核分裂板⁷⁾と比べても、高速中性子束は $10 \sim 10^3$ 倍程度高い。したがって、KUR 炉心内を利用することによって、微小な断面積のしきい反応や微量の照射試料しか得られないしきい反応の平均断面積が精度よく容易に測定できる。今後もKUR 炉心内を利用することによって数多くのしきい反応平均断面積の測定を行なうことが可能である。

次に、この標準高速中性子スペクトル場としてのKUR 炉心内を使用し、さらに

比較のために核分裂板をも併用して、いくつかのしきい反応断面積を測定した。本論文によって得られたこれらの平均断面積の値は、原子炉の高速中性子測定の上で有用であり、また放射化量の算出や照射損傷の評価のためにも役立つものである。さらに、これらの反応の平均断面積の値を用いることにより、従来多くの実験者によって測定されているエネルギー依存断面積の値を検討することができた。まずチタンの (n, p) 反応についてみると、 $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ 、 $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ および $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$ 反応の平均断面積の値はいずれも従来の値とほぼ合った。これらの値を使用することによって、チタンをしきい検出器として使用することが可能となった。またチタンの放射化分析のためにも本論文の結果は有用であろう。しかしながら、これらの反応に関するエネルギー依存断面積に関するデータは少なくまた精度も良くない。とくに $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ 反応の場合、エネルギー依存断面積から求めた平均断面積の値は本論文で求めた平均断面積の値と相当大きく相違している。この原因について今後さらに検討することが必要である。次に、本論文で求めたシリコンのしきい反応の平均断面積の値は、シリコン検出器やシリコンを用いた電子素子の照射損傷の評価の上で非常に役立つものと期待される。ただし、 $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ 反応についてみると、エネルギー依存断面積を用いて計算した平均断面積の値は、本論文の値の2倍に近い。これに関し今後の検討が必要と考えられる。第3には、いくつかの原子炉材料金属元素のしきい反応平均断面積を測定した。その結果は、これらの材料の高速中性子による照射損傷の評価の上で有用であるとともに、このうちのいくつかはしきい検出器として使用する上で役立つものである。しかしながら、いずれの反応もエネルギー依存断面積のデータは乏しく、しかも実験者によってその値が大きく異なることが多い。例えば、 $^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$ 反応についてみると、従来のエネルギー依存断面積と最近の報告とで約50%相違している。本論文の結果からみると、この2つの結果の中間が良いといえる。いずれにしても、このような反応のエネルギー依存断面積は今後測定されるべきであるが、その場合に、本論文で求めた平均断面積との比較をすることが望ましい。最後に、鉛に関する2つのしきい反応 $^{204}\text{Pb}(n, n')^{204\text{m}}\text{Pb}$ および $^{204}\text{Pb}(n, 2n)^{203}\text{Pb}$ 反応に関しては、平均断面積およびエネルギー依存断面積とも問題が残っている。さらに、 $^{204\text{m}}\text{Pb}$ の崩壊線図にさえ問題があることが分った。

今後の検討が必要である。

今回求めた数多くのしきい反応平均断面積の値をRoy and Hawtonに従って、実効しきいエネルギー E_{eff} と $\sigma/A^{2/3}$ の関係のプロットをすると、彼らの示した実験線の上にぼのった。このことからして、しきい反応の平均断面積の概略値は、この線によって求めることができるといえる。最近、しきい反応断面積を理論計算によって求めようとする試みがある⁸⁾⁹⁾。本論文では、それらの結果とも比較した。その結果、実験値は50%程度以内で理論値と一致した。今後、核の光学的ポテンシャルの形状等に関する知識が増加するにつれて、より精度の高いしきい反応断面積の計算が可能となろう。そうした場合に、本論文において求めたしきい反応平均断面積の値と比較検討することによって理論計算法が吟味できよう。

次に、本論文では、いくつかのしきい反応平均断面積の値を使用することによって、核分裂中性子スペクトルの形状に関する検討を行なった。その結果は、Leachman型など、いわゆる従来から提唱されている核分裂中性子スペクトルの方が、McElroy型として最近発表された硬いスペクトルより適当であるという結果が得られた。この点については、現在なお世界的に問題となっている。そして、しきい検出器を用いているグループの多くはむしろ硬いスペクトルの方を主張しているのにもかかわらず、本論文の結果は従来の形状を支持することになった。しかし、最近の報告では、従来の形状を支持する者がやゝ多い。核分裂中性子スペクトルの形状は原子炉設計の上で重要であり、今後なるべく速やかに明らかにすべき問題である。

第3には、照射損傷量に直接関係する量としての原子炉の高速中性子束の測定法について研究した。まず、この目的のために、しきい値の低いしきい反応としての $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応に着目し、そのエネルギー依存断面積を測定した。しきい検出器用としてのこの反応の有用性はすでに2、3指摘されていたが、その断面積データが不十分で、実験者によって値が一致していなかったため、しきい検出器として殆んど実用化されていなかった。本論文では、この反応のエネルギー依存断面積の測定にさいし、高速中性子束の決定に特に注意を払ったことが特色である。また一方、核分裂板を用いることによってこの反応の平均断面積を測定し、その結果を上述のエネルギー依存断面積を用いて求めた平均断面積と比較してよい一致を得た。こ

うしたことからして、本論文において求められた $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積および平均断面積の値は、妥当なものであり、今後の使用に役立つものと考えられる。

次に、この反応をしきい検出器として、原子炉の高速中性子束の測定に使用するさいの大きな意義として、この反応の反応率は、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応などのようにしきい値の高いしきい検出器の反応率に比べ、原子炉材料の高速中性子による照射損傷量との比例性が良好であることが挙げられる。3種類の異った高速中性子スペクトル場における、鉄および炭素の原子変位数と $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応等の反応率を比較検討することにより、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の反応率と原子変位数の比例性を定量的に示した。従来、原子炉における照射損傷実験の検討にさいし高速中性子スペクトルの形状まで考察するものは少なかった。しかしながら、今後より高度の照射損傷実験を行なう場合には、照射位置における高速中性子スペクトルの形状について注目すべきである。その為には、高速中性子スペクトルを測定することが最も望ましいが、それに代るものとして、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応を使用して求めた高速中性子束の値を使うことが望ましい。KURではすでにこの反応を高速中性子束の標準的測定法として採用している。

なお、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の生成核 $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の半減期がやゝ短いため、長期間にわたる高速中性子束の積分を行なうような場合、他のしきい検出器と併用することが必要となる。今後、この目的に適したしきい反応を検討したい。また、高速炉における照射損傷量と $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応の反応率の関係についても今後検討すべきである。

本論文を通じ、とくにその開発に努めた新しい実験的手法として、半導体検出器の使用を挙げることができる。まず、しきい検出器の誘導放射能の測定は、一部の例外を除き、ほぼ全面的にGe(Li)カウンタを使用した。これによって、従来化学分離が必要とされていたしきい反応の場合でも、それを省くことができた。その結果、化学操作によって入ってくる不確かさを除くことができた。また、光電ピーク計数値を求めることも、NaI(Tl)シンチレーションカウンタより遥かに容易となった。

一方、 ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタにはシリコン検出器を使用した。これらのシリコン検出器は使用法が簡単で、エネルギー分解能が優れているが、原子炉からの高速中性子が直接当たるとバックグラウンドが増加し、ついには照射損傷を起す。また原子炉からの強烈な γ 線が直接当たるとパイルアップ現象によりエネルギー分解能が劣化する。こうしたことを防止するために、シリコン検出器をしゃへいした形の ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタを試作して使用した。今後、もし高速中性子に対する感度が低く、かつ γ 線に対してもパイルアップを起し難い半導体検出器が出現すれば、原子炉の高速中性子測定のために極めて有用であろう。

本論文によって明らかにしたいいくつかの知見は、原子炉の高速中性子スペクトルの測定法、標準高速中性子スペクトル場の確立とその応用としてのしきい反応断面積の測定および照射損傷量に直接関係する量としての原子炉の高速中性子束の測定法を通じ、原子炉の高速中性子スペクトルの実験的側面において大きな意義があり、今後直ちに役立つことが多いと考えられる。

第2節 結 論

本論文を通じ、以下のようなことが結論できる：

(1) 第II章では、しきい検出器を用いた高速中性子スペクトル測定法について研究した結果、まず核分裂中性子スペクトルの実験式を第1項とした陪ラゲール級数法を提案し、その優秀性を立証した。すなわち、この方法は、核分裂中性子スペクトルおよびこれが変形した5種類の高速中性子スペクトルの再生が他の方法より優れている。なお、一つのしきい反応の反応率に誤差がある場合にはR DMMを加味した陪ラゲール級数展開法がより優れている。次に、陪ラゲール級数展開法を応用し、京大原子炉、KURの実験孔および炉心内の高速中性子スペクトルを求めた。その結果は、エネルギー分解能が少し不良であったが、計算値や他の方法による測定結果とほぼ一致した。また、KUR炉心内が核分裂中性子スペクトルに近いことを示した。

(2) 第Ⅲ章では、まず ${}^6\text{Li}$ および ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの特性に関し検討を加えた。とくに、これらのカウンタによって原子炉の実験孔の高速中性子スペクトル測定を行なうことを目的とした場合について、効率、分解能、バックグラウンド、 γ 線の影響、中性子エネルギーとパルス波高分布のピークチャンネルとの関係などを明らかにした。次に、これらのカウンタをKURの実験孔の高速中性子スペクトルの測定に応用した。その結果は計算値や他の方法による測定結果とほぼ一致した。また、これによってもKUR炉心内が核分裂中性子スペクトルに近いことを示した。さらに、 ${}^6\text{Li}$ サンドイッチカウンタによって、2, 3の媒質透過高速中性子スペクトルを測定し、全断面積の評価を行なった。

(3) 第Ⅳ章では、まずとくにしきい値の低いしきい反応としての ${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応のエネルギー依存断面積を測定した。その結果は、Vogt and Cross が求めた値に比較的近く、最近のButler and Santryの値よりは相当低い。本論文の値から核分裂中性子に対する平均断面積を計算すると $558 \pm 32 \text{ mb}$ となり、Royの値、Fabryの値などと誤差の範囲で一致した。さらに核分裂板によって平均断面積の値を求めたところ、 $560 \pm 7 \text{ mb}$ となり、上記の値との一致は極めて良い。

次に、このようにしきい値の低いしきい検出器を使用することによって、高速中性子による照射損傷量に直接関係する量としての原子炉の高速中性子束が測定できることを定量的に示した。

(4) 第Ⅴ章では、標準高速中性子スペクトル場として、KUR炉心内と濃縮ウラン核分裂板を用いることによって、 ${}^{46}\text{Ti}(n, p){}^{46}\text{Sc}$ 、 ${}^{47}\text{Ti}(n, p){}^{47}\text{Sc}$ 、 ${}^{48}\text{Ti}(n, p){}^{48}\text{Sc}$ 、 ${}^{28}\text{Si}(n, p){}^{28}\text{Al}$ 、 ${}^{29}\text{Si}(n, p){}^{29}\text{Al}$ 、 ${}^{30}\text{Si}(n, \alpha){}^{27}\text{Mg}$ 、 ${}^{51}\text{V}(n, \alpha){}^{48}\text{Sc}$ 、 ${}^{64}\text{Zn}(n, p){}^{64}\text{Cu}$ 、 ${}^{92}\text{Mo}(n, p){}^{92\text{m}}\text{Nb}$ 、 ${}^{93}\text{Nb}(n, 2n){}^{92\text{m}}\text{Nb}$ 、 ${}^{204}\text{Pb}(n, n'){}^{204\text{m}}\text{Pb}$ および ${}^{204}\text{Pb}(n, 2n){}^{203}\text{Pb}$ 反応の平均断面積を5.6~15%の精度で求めることができた。

KUR炉心内と核分裂板とで同じ反応の平均断面積を求めると両者はすべて実験誤差内で一致した。

平均断面積の測定結果は、従来の値やエネルギー依存断面積から求めた値と一致するものが多かったが、2、3問題があるものもあった。

次にこれらの平均断面積の結果について、有効しきい値、 E_{eff} を横軸にとり、平

均断面積を核の幾何学的表面積で割った値 $\bar{\sigma}/A^{2/3}$ を縦軸にとってプロットすると Roy and Hawton の示した関係によく合った。また、本論文の結果を Pearlstein の計算値と比べると、50% 程度以内で一致した。

最後に、核分裂中性子スペクトルの形状に関し、 $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 、 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 、 $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ 反応等によって検討を加えた。その結果、Leachman 型などいわゆる従来から提唱されている核分裂中性子スペクトルの方が、McElroy らが最近発表している硬いスペクトルより適当であることを示した。

(5) 誘導放射能は一部の例外を除き、全面的に Ge (Li) カウンタによって γ 線を測定する方法をとった。これによって、目的とする核種の同定とその定量的測定が容易になった。また従来は化学的分離が必要とされていた反応についてもそのまま測定することができた。

(参 考 文 献)

- 1) 木村逸郎：原子力学会誌，10，262 (1968)。
- 2) I. Kimura et al.：Ann. Reports, Research. Reactor Institute., Kyoto Univ., 3，58 (1970)。
- 3) I. Kimura et al.：ibid., 3，75 (1970)。
- 4) I. Kimura et al.：J. Nucl. Sci. Technol., 8，173 (1971)。
- 5) E. A. Straker：Proc. IAEA Specialist Meeting on Fast Reactor Spectrum Measurement and Their Interpretation, IAEA-138, p. 80 (1971)。

- 6) A. Fabry et al.: *Proc. Second IAEA Symp. on Nuclear Data for Reactors*, Vol. 2, p. 535 (1970).
- 7) J. A. Grundl: "*Fission-Neutron Spectra: Microscopic and Integral Results*", in "*Neutron Standard and Flux Normalization*", AEC Symposium Series, No. 23, p. 417 (1971).
- 8) S. Pearlstein: *Nucl. Sci. Eng.*, **23**, 238 (1965).
- 9) S. Pearlstein: "*Neutron Induced Reactions in Medium Mass Nuclei*", BNL-16271 (1971).

謝

辞

本研究を遂行するにあたり終始御指導御鞭撻を頂いた京都大学原子炉実験所長柴田俊一教授に深甚の謝意を表す。

また、本研究を支援して下さいった多くの方々、なかんずく 小林捷平、林 脩平、石原信二の各氏に負うところは大きく、ここに感謝する。

日本原子力研究所原子炉計測研究室の阪井英次室長と五藤 博氏には実験上数々の御協力を得た。ここに両氏に感謝したい。

最後に本研究を進める上でいろいろと協力を受けた原子炉実験所原子炉部門各位に心よりの謝意を表す。

(附表：本論文に関連して発表した論文および学会等講演題目の一覧表)

1. 発 表 論 文

- 1) “*The Measurement of Fast Neutron Spectra at the Experimental Hole of the Kyoto University Reactor with Threshold Detectors*”, Ann. Reports, Research Reactor Institute, Kyoto Univ., 1, 95 (1967/68)
- 2) “*Measurements of Neutron Flux and Spectrum at Irradiation Facilities of Kyoto University Reactor*”, *ibid.*, 2, 18 (1969).
- 3) “*Measurement of Cross Section for the $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103m}\text{Rh}$ Reaction and Its Application to Fast Neutron Flux Measurements*”, J. Nucl. Sci. Technol., 6, 485 (1969).
- 4) “*Measurement of Average Cross Section for the $^{232}\text{Th}(n, f)$ Reaction for the Fission-type Reactor Spectrum*”, Ann. Reports, Research Reactor Institute, Kyoto Univ., 3, 84 (1970).
- 5) “*Measurements of Average Cross Sections for Some Threshold Reactions for Neutrons with Fission-type Reactor Spectrum*” J. Nucl. Sci. Technol., 8, 59 (1971).
- 6) “*Measurements of Average Cross Section for $^{232}\text{Th}(n, 2n)^{231}\text{Th}$ Reaction to Neutrons with Fission-type Reactor Spectrum and of Gamma-Ray Intensities of ^{231}Th* ”, *ibid.*, 8, 492 (1971).
- 7) “*Integral Check of Fission Neutron Spectrum through Average Cross Sections for Some Threshold Reactions*”, Proc. of Specialist Meeting on the Status of Prompt Fission Neutron Spectra,

IAEA (to be published).

2. 総 説 および 技術報告

- 1) “しきい検出器による速中性子スペクトル測定”, KURRI-TR-27 (1967).
- 2) “ $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応を用いた高速中性子測定法の研究”, KURRI-TR-42 (1967).
- 3) “原子炉中性子場の性質とその測定法”, JAERI-memo 2776 (1967).
- 4) “*Time-of-Flight* による炉内中性子スペクトル測定”, 原子力学会誌, **10**, 262 (1968).
- 5) “サンディッチカウンターによる速中性子スペクトル測定”, KURRI-TR-50, p. 116 (1968).
- 6) “*KUR* 実験照射設備の中性子束とスペクトルの測定”, KURRI-TR-60 (1969).
- 7) “しきい検出器による高速中性子スペクトル測定 (2)”, KURRI-TR-61 (1969).
- 8) “ ^6Li および ^3He サンディッチカウンターによる高速中性子スペクトルの測定”, KURRI-TR-67 (1969).
- 9) “原子炉の炉内計測”, 応用物理, **39**, 30 (1970).
- 10) “しきい検出器による高速中性子測定”, KURRI-TR-89, p. 48 (1971).

3. 学会等講演

- 1) “*KUR* 炉心中の高速中性子束測定”, 原子力学会 昭和40年年会, A 7 (1965).

- 2) “*KUR* の高速中性子スペクトル (Ⅰ) *Threshold Detectors* による解析”
原子力学会第 5 回炉物理第 3 回炉工学合同分科会, C 38 (1965) .
- 3) “*KUR* の高速中性子スペクトル (Ⅱ) *Threshold Detectors* による解析
(2)”, 原子力学会第 6 回炉物理第 4 回炉工学合同分科会, A 39 (1966) .
- 4) “*KUR* の高速中性子スペクトル (Ⅲ) ${}^6\text{Li}$ *Sandwich Counter* による測定” 同上, A 40 .
- 5) “*KUR* の高速中性子スペクトル (Ⅳ) 原子核乾板による測定” 原子力学会
昭和42年年会, E 14 (1967) .
- 6) “ ${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応を用いた高速中性子測定”, 同上, E 15 .
- 7) “*KUR* の高速中性子スペクトル (Ⅴ) ${}^3\text{He}$ *Sandwich Counter* による測定”, 同上, E 17 .
- 8) “*Solid State Detector* の最近の進歩と問題点”, 同上, 討論会, 1 -
(3) .
- 9) “ ${}^3\text{He}$ サンドイッチカウンタの諸特性”, 原子力学会昭和42年炉物理炉工学
分科会, C-5 (1967) .
- 10) “黒鉛等透過高速中性子スペクトル”, 同上, C 49 .
- 11) “ ${}^{103}\text{Rh}(n, n'){}^{103\text{m}}\text{Rh}$ 反応断面積測定”, 原子力学会昭和43年年会, D 10
(1968) .
- 12) “重コンクリート等透過速中性子スペクトルの測定”, 同上, C 47 .
- 13) “2, 3の方法による高速中性子スペクトルの測定”, 京大原子炉実験所第
2回学術講演会 (1968) .
- 14) “*KUR* 実験設備の中性子束とスペクトル (Ⅲ) 高速中性子”, 原子力学会昭

和43年炉物理炉工学分科会, B 15 (1968) .

- 15) “遮蔽層透過速中性子スペクトル測定”, 同上, C 53 .
- 16) “原子炉スペクトルに対するしきい反応断面積測定”, 原子力学会昭和44年年会, D 24 (1969) .
- 17) “ ^3He 比例計数管の試作”, 原子力学会昭和44年炉物理炉工学分科会, C 26 (1969) .
- 18) “原子炉スペクトルに対するしきい反応断面積測定 (Ⅱ)”, 同上, C 31 .
- 19) “核分裂板を用いたしきい反応断面積の測定”, 原子力学会昭和45年年会, E 4 (1970) .
- 20) “ $^{232}\text{Th}(n, 2n)^{231}\text{Th}$ 反応の平均断面積の測定”, 原子力学会 昭和45年炉物理炉工学分科会, C 44 (1970) .
- 21) “ $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$ の断面積の測定”, 原子力学会昭和46年年会, E 11 (1971) .
- 22) “放射化法による ^{231}Pa の中性子断面積測定”, 同上, E 12 .
- 23) “ネプツニウムの核分裂平均断面積の測定”, 原子力学会昭和46年炉物理炉工学分科会, D 10 (1971) .
- 24) “中性子しきい反応断面積の測定と評価”, 京大原子炉実験所第 6 回学術講演会 (1972) .

